

卒業論文

電子・陽子質量比の変化に敏感な分子準位
の分光

指導教員：井上 慎 准教授

平成25年2月提出

東京大学工学部 物理工学科

03-110527 大久保 弘樹

03-110531 荻野 敦

目次

第 1 章	序論	1
1.1	研究の背景	1
1.2	本研究の概要	2
1.3	本論文の構成	4
第 2 章	理論	5
2.1	分子準位と電子・陽子質量比	5
2.1.1	分子の準位	5
2.1.2	WKB 近似	7
2.1.3	分子準位と m_e/m_p の変化	11
2.1.4	LEVEL による計算	14
2.2	KRb 分子の hyperfine structure	17
2.2.1	行列の拡張	19
2.3	誘導ラマン断熱遷移 (STIRAP)	22
2.3.1	STIRAP の理論	22
2.3.2	STIRAP の実験条件	25
第 3 章	光源の作製	27
3.1	外部共振器型半導体レーザー (ECLD)	27
3.2	cavity lock	36
3.2.1	レーザーの空間モード	38
3.2.2	ロックの仕方	40
3.2.3	線幅の評価	42
3.3	Master レーザーに対する slave レーザーの offset lock	44
第 4 章	STIRAP による分子準位の探索	49
4.1	実験の準備	49

4.1.1	音響光学素子 (AOM) による光強度の変調	49
4.1.2	実験のタイムライン	53
4.1.3	周波数の予測	55
4.1.4	hyperfine level 間の遷移強度	57
4.2	STIRAP による分光	59
4.2.1	2 段の STIRAP による分光	59
4.2.2	1 段の STIRAP による分光	61
4.2.3	$X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の分光	61
4.2.4	これまでのデータによる計算値の fitting	64
4.2.5	Injection locking による光強度の増加	65
4.2.6	$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の分光	67
4.2.7	$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2)$ の分光	74
4.3	STIRAP による分光のまとめ	78
4.3.1	計算値の fitting	78
4.3.2	m_e/m_p の変化に対する感度	79
4.4	hyperfine 準位間のマイクロ波遷移	81
第 5 章	まとめと展望	87
付録 A	EOM 用の共振回路	91
付録 B	高速フォトダイオード	95
付録 C	singlet component および 2 次のゼーマン効果の計算	97
付録 D	Hyperfine 準位の磁場依存性の計算	103
謝辞		111
謝辞		111
参考文献		113

目次

1.2.1	分子準位と今回扱う準位の概念図	3
1.2.2	本実験の概略図	3
2.1.1	$^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の電子ポテンシャル曲線 ([26][27] に示された値から計算)	7
2.1.2	ポテンシャルの凹みの中での運動	10
2.1.3	本節のポテンシャルと振動準位の概念図	13
2.1.4	Cs_2 分子について計算したエネルギー感度 ([17] より抜粋)	13
2.1.5	$^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子について計算したエネルギー感度 (LEVEL[30] の数値計算による)	16
2.1.6	図 2.1.5 の一部を拡大して見たもの	16
2.2.1	ハミルトニアン of 行列表示	18
2.2.2	$X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の hyperfine structure	21
2.3.1	Λ 型の 3 準位系	23
2.3.2	実際に使用したパルスの形	26
3.1.1	Littrow 型 ECLD の構造	28
3.1.2	作製した ECLD の写真	28
3.1.3	LD の保護回路	29
3.1.4	ECLD の I-P 特性 (波長 872.5 nm)	29
3.1.5	ECLD の I-P 特性 (波長 880 nm)	30
3.1.6	ECLD の I-P 特性 (波長 890 nm)	30
3.1.7	ECLD の I-P 特性 (波長 900 nm)	31
3.1.8	ECLD の I-P 特性 (波長 910 nm)	31
3.1.9	ECLD の I-P 特性 (波長 920 nm)	31
3.1.10	ECLD の I-P 特性 (波長 930 nm)	32
3.1.11	ECLD の I-P 特性 (波長 940 nm)	32
3.1.12	ECLD の波長ごとの閾値と傾きのプロット	33

3.1.13	LD からの ASE のスペクトル	34
3.1.14	光学系の概略図	35
3.2.1	ULE cavity に周波数をロックするための系	36
3.2.2	cavity lock 回路	37
3.2.3	TEM00	39
3.2.4	TEM01	39
3.2.5	TEM02	39
3.2.6	ULE cavity からの反射信号	41
3.2.7	HF lock on	41
3.2.8	HF lock on (2)	41
3.2.9	HF lock, PZT lock, LF lock on	41
3.2.10	Span: 5MHz	42
3.2.11	Span: 5kHz	43
3.2.12	Span: 5kHz (linear)	43
3.3.1	offset lock のための系の概略	44
3.3.2	offset lock のための回路	46
3.3.3	ロックされていないビート信号 (SPAN: 10 MHz)	47
3.3.4	ロックされたビート信号 (SPAN: 10 MHz)	47
3.3.5	ロックされたビート信号 (SPAN: 200 Hz)	47
4.1.1	AOM の模式図	49
4.1.2	AOM に入れる RF を制御するための系	50
4.1.3	AOM ドライバの回路図	51
4.1.4	AOM により強度変調された光	52
4.1.5	実験のタイムライン	53
4.1.6	光会合の概略図	54
4.1.7	実験の概略図	54
4.1.8	LEVEL による準位間の周波数	55
4.1.9	$ J_2 = 1, I_2 = 2, F_2 = 3 \rangle$ と $ J_1 = 0, I_1 = 2, F_1 = 2 \rangle$ の間の遷移モーメントの比	58
4.2.1	2 段の STIRAP	59
4.2.2	2 段の STIRAP による信号 (範囲 20MHz)	60
4.2.3	2 段の STIRAP によるの信号 (範囲 0.5MHz)	60
4.2.4	1 段の STIRAP	61

4.2.5	$X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$)	62
4.2.6	$X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 1$)	62
4.2.7	$X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 3)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$)	63
4.2.8	$X^1\Sigma^+(v = 86)$ の準位の探索のまとめ	63
4.2.9	Injection locking のための光学系	66
4.2.10	Injection locking した光の I-P 特性	66
4.2.11	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 3$)	67
4.2.12	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $200 \mu\text{s}$)	68
4.2.13	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $400 \mu\text{s}$)	68
4.2.14	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)	68
4.2.15	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$)	69
4.2.16	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $200 \mu\text{s}$)	70
4.2.17	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $400 \mu\text{s}$)	70
4.2.18	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)	70
4.2.19	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$)	71
4.2.20	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 3)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$, 待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)	71
4.2.21	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 3)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $400 \mu\text{s}$)	71
4.2.22	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$)	72
4.2.23	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$)	73
4.2.24	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)	73
4.2.25	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $200 \mu\text{s}$)	73
4.2.26	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の準位の探索のまとめ	74
4.2.27	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 3$, 待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)	75
4.2.28	$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 3$, 待ち時間 $200 \mu\text{s}$)	75

4.2.29	$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 1/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{Rb} = 3/2, F = 2$, 待ち時間 $1000 \mu s$)	76
4.2.30	$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 1/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{Rb} = 3/2, F = 2$, 待ち時間 $200 \mu s$)	76
4.2.31	$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 1/2)$ の準位の探索のまとめ	77
4.3.1	$X^1\Sigma^+$ と $a^3\Sigma^+$ の m_e/m_p に対する感度	80
4.3.2	$a^3\Sigma^+$ の部分の拡大図	80
4.4.1	マイクロ波遷移の概略図	81
4.4.2	マイクロ波遷移のタイムライン	82
4.4.3	マイクロ波遷移によって得られた信号	82
4.4.4	狭い範囲で取り直したもの	83
4.4.5	Blank2=0 μs	84
4.4.6	Blank2=200 μs	84
4.4.7	Blank2=400 μs	84
4.4.8	Blank2=600 μs	85
4.4.9	Blank2=800 μs	85
4.4.10	磁場の減衰に対する周波数の変化	85
A.1	EOM 用共振回路の回路図	91
A.2	EOM 周辺の実際の回路	92
A.3	EOM によるサイドバンド	93
A.4	EOM 共振回路の周波数特性	93
B.1	高速フォトダイオードの回路図	95
C.1	$X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0, F = 0)$ の 2 次のゼーマン効果によるエネルギー変化	97
C.2	$a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0, F_{Rb} = 1/2, F = 1)$ の 2 次のゼーマン効果によるエネルギー変化	98
D.1	Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 5/2, F = 4, 3, 2, 1)$)	104
D.2	Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 3/2, F = 3, 2, 1, 0)$)	105
D.3	Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 1/2, F = 1, 2)$)	106
D.4	Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($X^1\Sigma^+(v = 86, F_{Rb} = 3/2, F = 3, 2, 1, 0)$)	107

表目次

3.1.1	ECLD の波長ごとの閾値と傾き	33
4.1.1	準位のエネルギーの予想	56
4.1.2	励起状態の基底を書き換えるときの展開係数の 2 乗	58
4.2.1	$X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ の分裂の実験値から予測しなおしたエネルギー準位	64
4.3.1	$X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の分裂の実験値から予測しなおしたエネルギー準位	78
4.3.2	91-22 と 86-16 の比較	79
5.1	本研究で得られた感度・増幅率と先行研究との比較	88
C.1	fitting した係数	98
D.1	ゼーマン分裂をフィッティングして求めた係数 ($a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 5/2, F = 4, 3, 2, 1)$)	108
D.2	ゼーマン分裂をフィッティングして求めた値 ($a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 3/2, F = 3, 2, 1, 0)$)	109
D.3	ゼーマン分裂をフィッティングして求めた係数 ($a^3\Sigma^+(v = 16, F_{Rb} = 1/2, F = 1, 2)$)	109
D.4	ゼーマン分裂をフィッティングして求めた係数 ($X^1\Sigma^+(v = 86, F_{Rb} = 3/2, F = 3, 2, 1, 0)$)	110

第 1 章

序論

1.1 研究の背景

磁気光学トラップ、蒸発冷却等 [1]、レーザーを用いた原子の冷却技術の発展の結果、1995 年に、原子気体の Bose-Einstein 凝縮 (BEC) が実現された。[2],[3] 冷却原子系では、レーザーや磁場を利用することで原子の内部状態や相互作用の強さなどさまざまな状態を制御できる。そのような操作性の高さを生かし、BEC の実現以降冷却原子系では多くの研究がなされてきた。例えば、BCS-BEC クロスオーバー [4]、超流動-Mott 絶縁体相転移 [5]、Feshbach 共鳴 [6]、光格子時計 [7] などである。

我々の研究室では極低温極性分子の系に注目している。極性分子は電場をかけることで電気双極子モーメントを持つため、分子間には双極子-双極子相互作用がはたらく。これは r^{-3} に比例する、長距離かつ非等方的な相互作用である。また振動、回転など原子よりも多くの自由度をもっている。これらの性質は量子コンピューティングへの応用 [8] や固体物性のシミュレーションなど、多くの分野への応用が期待されている。分子はその豊富な内部自由度のためレーザー冷却によって冷却することが困難であるが、直接的に分子を冷やす方法 (直接法) として Buffer-gas cooling [9] や、間接的に冷却分子を作る方法 (間接法) として、冷却原子をくっつけて冷却分子を作る Feshbach 会合 [10]、光会合 (Photoassociation) [11] など、冷却分子を作る手法が開発されてきた。2008 年には JILA のグループが Feshbach 会合と誘導ラマン断熱遷移 (STIRAP) [12] を組み合わせた方法によって振動回転基底状態の $^{40}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の生成に成功している [13]。

本研究では、冷却分子系における電子陽子質量比の精密測定をテーマとしている。物理法則が不変であることはアインシュタインの等価原理など言われているが、実験的に確認されてはいない。例えば、それまで信じられてきた恒常性が覆った例として宇宙論がある。宇宙は長い間恒常的な存在とされてきたが、1965 年の宇宙背景放射の発見によって、ビッグバン理論が宇宙の起源と進化を説明するよい理論とみなされるようになった。物

理法則ももしかしたら空間的・時間的に変化しているかもしれない。物理法則が空間的・時間的に変化しているかどうかは、微細構造定数、電子陽子質量比、 g 因子などといった無次元の物理定数が空間的・時間的に変化しているかどうかをみることによって検証できる。本研究ではその中でも電子陽子質量比を選択した。電子陽子質量比の恒常性を確かめるための方法として準恒星状天体 (Quasar) などの宇宙の遠く離れた場所からの光 (水素分子の吸収スペクトルなど) の観測をする手法がある [14][37]。もうひとつは原子や分子の分光によるもので、実験室実験のみで行うことができる [15]。電子陽子質量比の測定において、現在最も精度の高い実験室実験は [16] であり、 $\frac{1}{\mu} \frac{\partial \mu}{\partial t} = (-3.8 \pm 5.6) \times 10^{-14} \text{ yr}^{-1}$ となっている。本研究では、DeMille の提案 [17] に基づき、これよりも良い精度を出せる系を作ることを目的としている。

1.2 本研究の概要

原子や分子の準位間の遷移周波数は電子質量 m_e や陽子質量 m_p に依存しているので、分光によって電子・陽子質量比 μ の変化を検出するには、これらの周波数の値を精度よく測ってその変化を見ればよい。このときに重要な値は、 μ の変化に対しての遷移周波数 Ω の絶対的な変化 $\Delta\Omega/(\Delta\mu/\mu)$ 、および相対的な変化 $(\Delta\Omega/\Omega)/(\Delta\mu/\mu)$ である。前者は μ の変化への Ω の“感度”、後者は μ の変化率に対して Ω の変化の割合が何倍されるかという“増幅率”とみなせる。これらの値が大きいほど測定がしやすいが、[16] も含めた通常の場合、増幅率は 1/2 でしかない。ところが DeMille らによって、 Cs_2 分子の振動準位の適切な組をとれば、感度が同程度でも増幅率が 1000 倍以上になる実験が可能であると提案された [17]。彼らによると増幅率が特に大きくなるのは、分子準位の中でも異なる電子ポテンシャルにあってエネルギーの近い 2 つの振動準位間の遷移である。

我々の研究室では $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ の低温分子を生成し分光する実験を行っている。この分子で μ への感度と増幅率が大きい準位を探す。 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子は Cs_2 と同じように、 $X^1\Sigma^+$, $a^3\Sigma^+$ と表記されるそれぞれ singlet, triplet の電子状態を持つ。この 2 つのポテンシャルでエネルギーが近い振動準位の組は $X^1\Sigma^+, v = 91 - a^3\Sigma^+, v = 22$ と $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ とがある (v は振動量子数)。前者については本研究室のこれまでの研究によって、 μ の変化に対する増幅率が 1448 倍であると求められた。しかし、2.1 節で述べるように、後者はこれより高い増幅率をとることが予想される。本研究は $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ 間の遷移について、感度と増幅率を求めて更に高い値が得られることを確かめ、この系で十分な測定精度を出す方法を考察する (図 1.2.1 に今回扱う準位の概念図を示した)。

増幅率を計算するには、2 準位間の周波数差を測定する必要がある。この 2 つの振動準位は、電子スピンと核スピンの磁気的な相互作用 (hyperfine interaction) によりお互いの mixing が起こって、14 個の更に細かい準位 (超微細構造, hyperfine structure) に分か

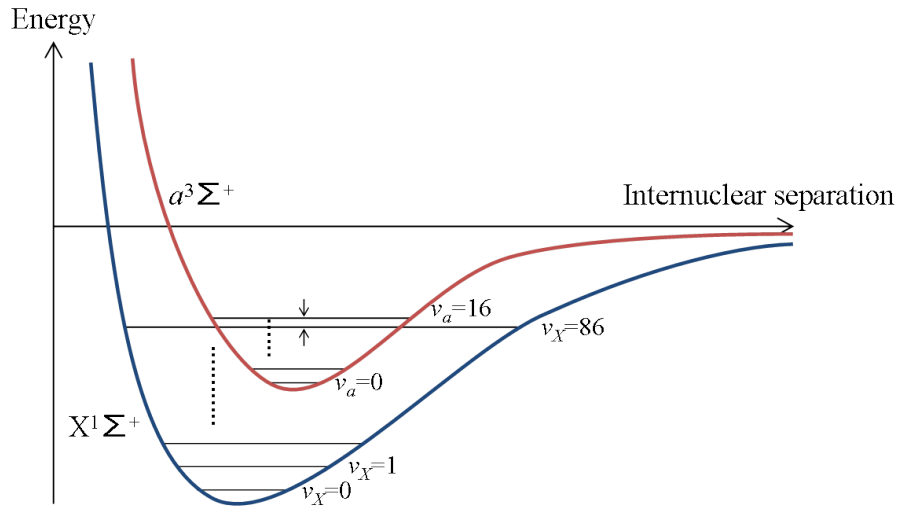


図 1.2.1 分子準位と今回扱う準位の概念図

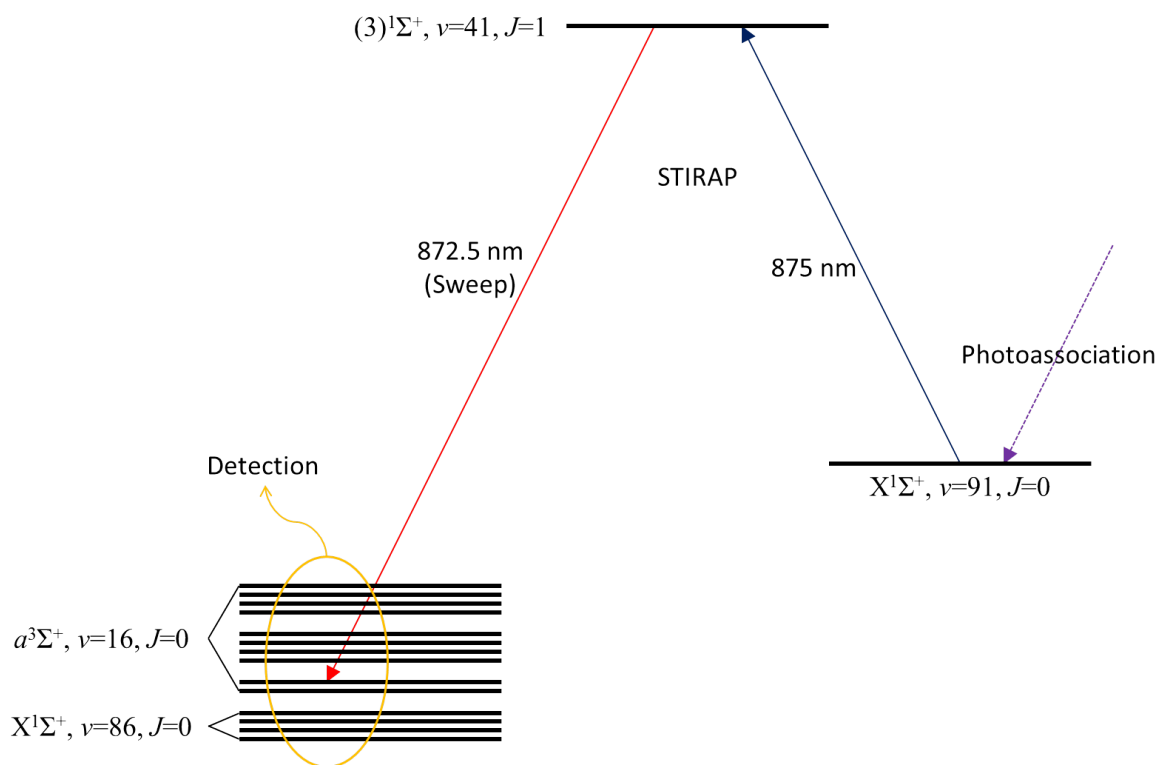


図 1.2.2 本実験の概略図

れている。この構造は計算によっておおよその位置は予測できるが、精度が十分でない。我々はこれらの準位を、誘導ラマン断熱遷移 (STIRAP) と呼ばれる方法を用いて分光し周波数を実測する。本研究室では先行研究 [18] により、STIRAP の適切な中間状態がすでに選出されており、生成した分子を任意の振動準位に高効率で遷移させることが可能になっている。そこで我々は波長 872.5 nm 付近の狭線幅の光源を作製し、この周波数を掃印することで分子準位の探索を実行した (図 1.2.2)。

分光から得られた結果に対して計算値の補正を行うことで、 μ に対する感度と増幅率が計算できる。これと $X^1\Sigma^+, v = 91 - a^3\Sigma^+, v = 22$ 間の結果を比較して、 $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ 間が μ の変化検出に適しているのかを確認する。更に我々は、準位間のマイクロ波遷移も実行した。この系で μ の変化を精度よく検出するには準位間の周波数間隔を正確に測る必要があるが、それがどれほどの精度なのかを最後に考察する。

1.3 本論文の構成

本論文は以下のような構成になっている:

- 第1章では本研究の背景と目的、概略を述べた。
- 第2章では $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ 間の遷移が電子・陽子質量比 μ の変化に対し高い増幅率を持つ理由を述べた後、本研究で扱う準位のより微細な構造を示す。続いて、実際にこの準位を分光する際に行う誘導ラマン断熱遷移 (STIRAP) の理論的背景を述べる。
- 第3章では STIRAP に向けて我々が新しく作製した光源について述べ、性能を評価した結果を示す。
- 第4章では第3章で作製した光源を用いて $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の STIRAP を実行し、分子準位探索の結果を示す。得られた結果について、 μ の変化に対する感度、増幅率を計算し、観測した準位が μ の変化検出に適しているか考察する。最後に、 $v = 86 - v = 16$ 間のマイクロ波遷移の結果も加えて、この準位での μ の変化の測定についてより深い考察をする。
- 第5章では本研究のまとめと今後の展望を述べる。

第 2 章

理論

2.1 分子準位と電子・陽子質量比

2.1.1 分子の準位

分子は多数の原子核と電子から構成され、原子よりも更に複雑な系である。**KRb** 分子の分光の準備として、まず始めに分子の量子力学的な扱いとエネルギー準位について簡単に述べる。この節では主に二原子分子の場合を扱うが、原子や分子全般の解説は [1], [20], [21], [22], より詳細には [23], [24] などが参考になる。

分子には電子状態のエネルギーのほか、原子核の回転と振動によるエネルギーがある。分子の近似の基礎となるのは、原子核の質量 M が電子の質量 m_e に比べて大きいということである。このために核の運動は電子に比べて遅く、電子の運動を考えるときには核が平衡位置に静止したものと仮定できる。実際、エネルギーを E_e (電子的), E_v (振動的), E_r (回転的) と分けると、これらのオーダーは [20] や [25] で議論されているように、

$$E_e : E_v : E_r \sim 1 : \sqrt{\frac{m_e}{M}} : \frac{m_e}{M} \sim 10000 : 100 : 1 \quad (2.1.1)$$

であるから、核の運動の周期は電子と比べて長い。

電子が n 個、原子核が N 個ある分子の Schrödinger 方程式は、

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_{i=1}^n \nabla_i^2 - \sum_{j=1}^N \frac{\hbar^2}{2M_j} \nabla_j^2 + V(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j) \right\} \Psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j) = E \Psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j) \quad (2.1.2)$$

と書ける (V はすべての粒子間の静電相互作用)。核を固定して考えると、電子の運動は \mathbf{R}_j をパラメータとして

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_{i=1}^n \nabla_i^2 + V(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j) \right\} u_{\mathbf{R}_j}(\mathbf{r}_i) = U(\mathbf{R}_j) u_{\mathbf{R}_j}(\mathbf{r}_i) \quad (2.1.3)$$

を解いて得られる。 $\Psi(\mathbf{r}_i, \mathbf{R}_j) = u_{\mathbf{R}_j}(\mathbf{r}_i)w(\mathbf{R}_j)$ として式 2.1.2 に戻すと、

$$u \left\{ - \sum_{j=1}^N \frac{\hbar^2}{2M_j} \nabla_j^2 + U(\mathbf{R}_j) - E \right\} w = \sum_{j=1}^N \frac{\hbar^2}{2M_j} \{ w \nabla_j^2 u + 2 \nabla_j u \cdot \nabla_j w \} \quad (2.1.4)$$

であり、 \mathbf{R}_j による u の変化は小さいとして右边を無視すると、核の運動は $U(\mathbf{R}_j)$ をポテンシャルとした Schrödinger 方程式

$$\left\{ - \sum_{j=1}^N \frac{\hbar^2}{2M_j} \nabla_j^2 + U(\mathbf{R}_j) \right\} w(\mathbf{R}_j) = E w(\mathbf{R}_j) \quad (2.1.5)$$

によって求まる。以上の近似は Born-Oppenheimer 近似と呼ばれる。

こうして分子の運動は 2 つの方程式 2.1.3 と 2.1.5 を解くことに分けられた。一般の場合に式 2.1.3 を正確に解くのは困難で、様々な近似によって解いて実験値と比較される。図 2.1.1 は、今回扱う $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子について論文 [26][27] に基づきポテンシャル曲線 $U(R)$ をプロットしたものである (横軸は核間距離 R)。安定な分子のポテンシャルは図の赤線のような形で、 $R \rightarrow \infty$ では解離した原子と同じエネルギーをもち、そこから R を減少させていくと van der Waals 力のためにエネルギーが減る。逆に $R \rightarrow 0$ では原子核同士の強い反発のために $U \rightarrow \infty$ となる。よって U はどこかで極小値を取り、平衡核間距離 R_e をもつ。このような振る舞いに対する経験的な近似式としては、Morse ポテンシャル $U(R) = D_e [e^{-2\alpha(R-R_e)} - 2e^{-\alpha(R-R_e)}]$ がよく使われる。

二原子分子の場合、式 2.1.5 は重心運動を分離し相対座標 \mathbf{R} 、換算質量 $M = M_1 M_2 / (M_1 + M_2)$ を用いれば

$$\left\{ - \frac{\hbar^2}{2M} \nabla_{\mathbf{R}}^2 + U(R) \right\} w(\mathbf{R}) = E w(\mathbf{R}) \quad (2.1.6)$$

と中心力場の運動と同じ形になる。よって $w(\mathbf{R}, \theta, \phi) = R^{-1} \chi(R) Y_{JM}(\theta, \phi)$ (角部分は球面調和関数) と変数分離できて、動径部分は

$$\left\{ - \frac{\hbar^2}{2M} \frac{d^2}{dR^2} + U(R) + \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2MR^2} \right\} \chi(R) = E \chi(R) \quad (2.1.7)$$

である。 $U(R)$ が調和振動子のポテンシャル $K(R - R_e)^2/2$ で、 R_e の周りの微小振動の場合は、

$$E_{vJ} \cong \hbar \omega_e \left(v + \frac{1}{2} \right) + B_e J(J+1), \quad \omega_e = \sqrt{\frac{K}{M}}, B_e = \frac{\hbar^2}{2MR_e^2} \quad (2.1.8)$$

となり、これは回転量子数 J および振動量子数 v の小さい範囲ではよい近似である。 v, J が大きい範囲では例えば

$$E_{vJ} = \hbar \omega_e \left(v + \frac{1}{2} \right) - \hbar \omega_e x_e \left(v + \frac{1}{2} \right)^2 + \dots \\ + B_v J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2 + \dots \quad (2.1.9)$$

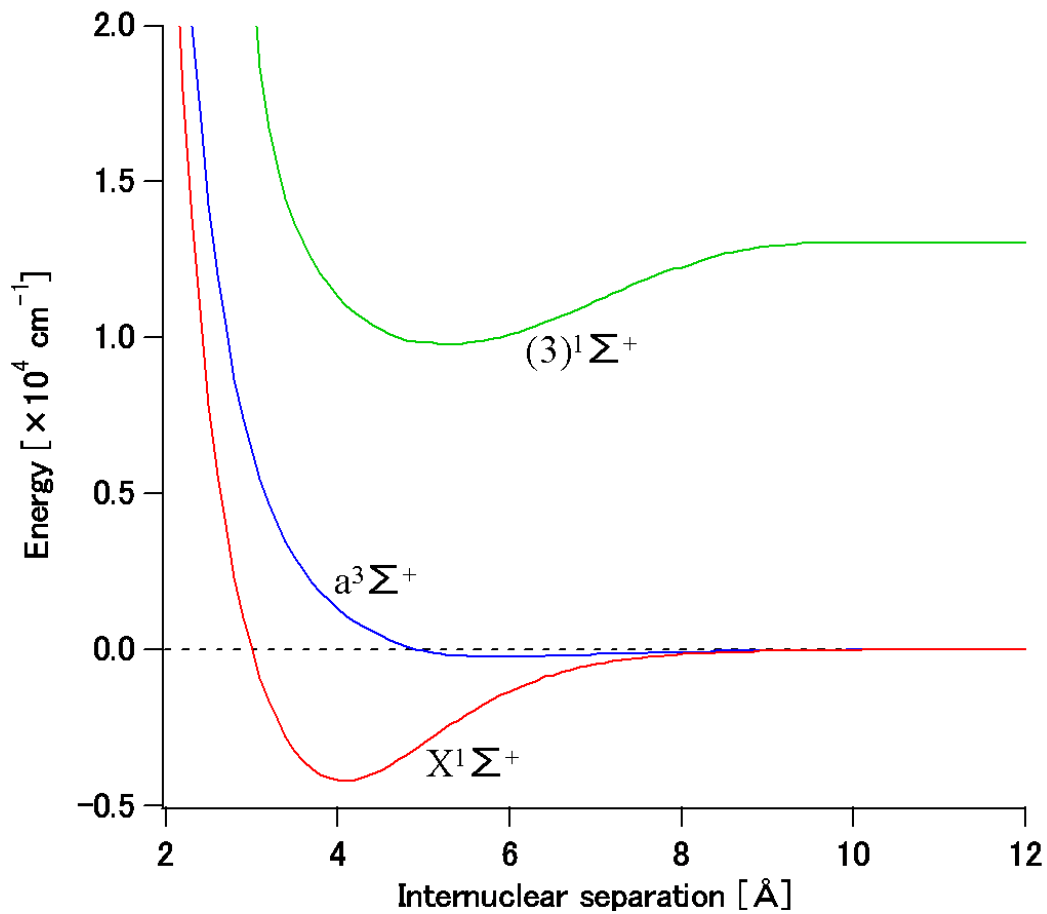


図 2.1.1 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の電子ポテンシャル曲線 ([26][27] に示された値から求めた)。本実験に関与する準位のみ示している。 $X^1\Sigma^+$ などは電子状態を区別する記号で、左肩はスピン多重度 $2S + 1$ 、 Σ は全角運動量の分子軸方向の成分が 0 であること、右肩の $+$ は波動関数の分子軸を含む平面に関する鏡映対称性を表す。

のような補正項がついた形で表される。式 2.1.9 の第 2 項は非調和性により振動準位の間隔が狭くなること、第 3 項は v によって振幅が変わり B が v に依存すること、第 4 項は回転が激しい (J が大きい) と遠心力により分子の結合が伸びることの効果を表す。[20] には Morse ポテンシャルの場合の式 2.1.7 の固有値が示されていて、実際に式 2.1.9 のような項が見られる。なお、本研究のような低温分子では J が制御できるが、今回観測したのは $J = 0$ の準位である。

2.1.2 WKB 近似

本節では、式 2.1.7 から求まる振動準位を次節で近似的に扱う際に用いる WKB(Wentzel-Kramers-Brillouin) 近似について触れる。この節の導出は主に [19] に基づくもので、詳細

は [19] や他書を参照されたい。

WKB 近似は波動関数をプランク定数のべき乗で展開することに基づく方法である。1次元の Schrödinger 方程式

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2 u(x)}{dx^2} + V(x)u(x) = Eu(x) \quad (2.1.10)$$

について、固有関数を $u(x) = A \exp[iS(x)/\hbar]$ とおく。これを式 2.1.10 に代入すると、

$$i\hbar S'' - S'^2 + 2m(E - V) = 0 \quad (2.1.11)$$

を得る (' は x に関する微分を表す)。 $S(x)$ を \hbar のべき乗に展開する:

$$S = S_0 + \hbar S_1 + \hbar^2 S_2 + \dots \quad (2.1.12)$$

式 2.1.12 を式 2.1.11 に代入し、両辺で \hbar の同じ次数の項を等しいとおくと、

$$\begin{cases} 0 \text{ 次: } & -S_0'^2 + 2m(E - V) = 0 \\ 1 \text{ 次: } & iS_0'' - 2S_0' S_1' = 0 \\ & \vdots \end{cases} \quad (2.1.13)$$

を得る。WKB 近似はこれを解いて S_0, S_1 までの項をとる近似である。

- $V(x) < E$ のとき

$$k(x) = \frac{\sqrt{2m[E - V(x)]}}{\hbar} \quad (2.1.14)$$

とおくと (k は局所的な波数とみなせる)、式 2.1.13 の第一式から

$$S_0(x) = \pm \hbar \int k(x) dx \quad (2.1.15)$$

と解けて、これを第二式に代入すると、 $S_1' = \frac{i}{2} \frac{k'}{k}$ より

$$S_1(x) = \frac{i}{2} \ln k(x) \quad (2.1.16)$$

が得られる。よって、1次までの近似解は以下のように求まる:

$$u(x) = Ak^{-\frac{1}{2}} \exp\left[\pm i \int k dx\right] \quad (V < E) \quad (2.1.17)$$

これは振動型の解である。

- $V(x) > E$ のとき

$$\kappa(x) = \frac{\sqrt{2m[V(x) - E]}}{\hbar} \quad (2.1.18)$$

とおくと、式 2.1.13 から同様にして

$$S_0(x) = \pm i\hbar \int^x \kappa(x) dx \quad (2.1.19)$$

$$S_1(x) = \frac{i}{2} \ln \kappa(x) \quad (2.1.20)$$

が得られる。よって、近似解は

$$u(x) = B\kappa^{-\frac{1}{2}} \exp\left[\pm \int^x \kappa dx\right] \quad (V > E) \quad (2.1.21)$$

となり、これは指数型の解である。

WKB 近似は式 2.1.12 の第 2 項 $\hbar S_1$ が第 1 項 S_0 に比べて小さいときに有効である。 S_0 は x について単調増加だから、比 $\hbar S'_1/S'_0$ が小さければ $\hbar S_1/S_0$ も小さいと考えて

$$\left| \frac{\hbar S'_1}{S'_0} \right| = \left| \frac{k'}{2k^2} \right| = \left| \frac{\lambda(x)}{4\pi} \frac{1}{k} \frac{dk}{dx} \right| \ll 1 \quad (2.1.22)$$

($\lambda(x) \equiv 2\pi/k$: 局所的なド・ブロイ波長)

となること、すなわちド・ブロイ波長の距離を進む間に波数の変化の割合が小さい (ポテンシャルがゆっくり変化する) ことが、WKB 近似が成り立つ条件といえる。 $V(x) = E$ となる点 x を転回点と呼び、古典的運動ではこの点で粒子の運動の向きが変わる。転回点では $k = \kappa = 0$ となるから条件式 2.1.22 は破れて WKB 近似は使えない。しかし、転回点から数波長はなれたところでは WKB 近似はよい近似となっている場合が多い。

式 2.1.17 と式 2.1.21 の解を転回点で結びつけるのが、接続公式と呼ばれるものである。接続公式の導出は省略するが、転回点の近傍ではポテンシャルが線形であると近似し、元の Schrödinger 方程式の正確な解 (特殊関数を使って書ける) の漸近形が式 2.1.17, 2.1.21 の形になるように解の適当な線形結合をとることで導かれる。特に、 $V(x) > E$ となる x で指数関数的に減衰する解に対しては

$$\frac{1}{2} \kappa^{-\frac{1}{2}} e^{-\xi_2} \longrightarrow \kappa^{-\frac{1}{2}} \cos\left(\xi_1 - \frac{\pi}{4}\right) \quad (2.1.23)$$

となる [19]。ただし $\xi_1 = \int k dx$, $\xi_2 = \int \kappa dx$ で、積分は転回点を端点とし x が転回点から離れるにつれて ξ_1, ξ_2 が増加する向きにとる。

WKB 近似を、2 つの転回点 x_1, x_2 をもつポテンシャルの凹みの中の運動に適用する (図 2.1.2)。境界条件より、 $x < x_1$ (領域 2) および $x > x_2$ (領域 3) では波動関数は指数的に減衰する WKB 解のみを持つ。領域 2 の解を

$$\frac{1}{2} \kappa^{-\frac{1}{2}} \exp\left[-\int_x^{x_1} \kappa dx\right] \quad (2.1.24)$$

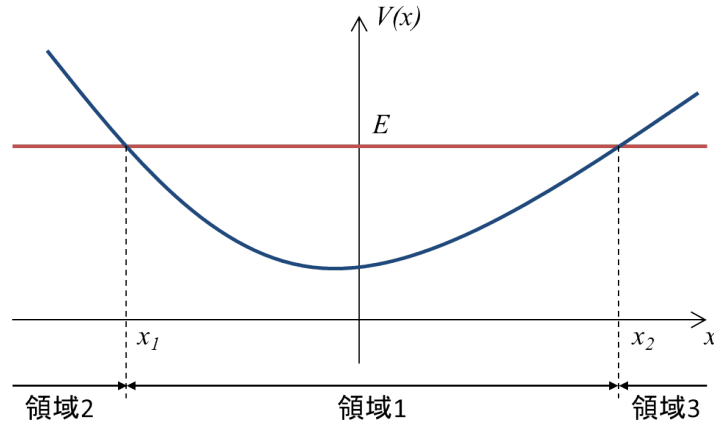


図 2.1.2 ポテンシャルの凹みの中での運動。転回点は x_1, x_2

とすると、式 2.1.23 の接続公式から、領域 1 ($x_1 < x < x_2$) での解は

$$k^{-\frac{1}{2}} \cos\left(\int_{x_1}^x k dx - \frac{\pi}{4}\right) \quad (2.1.25)$$

である。同様に、領域 3 と領域 1 の解を接続すると、

$$\frac{1}{2} \kappa^{-\frac{1}{2}} \exp\left[-\int_{x_2}^x \kappa dx\right] \quad (\text{領域 3}) \quad (2.1.26)$$

$$\rightarrow k^{-\frac{1}{2}} \cos\left(\int_x^{x_2} k dx - \frac{\pi}{4}\right) \quad (\text{領域 1}) \quad (2.1.27)$$

となる。ここで、

$$\begin{aligned} \int_x^{x_2} k dx - \frac{\pi}{4} &= \int_x^{x_1} k dx + \int_{x_1}^{x_2} k dx - \frac{\pi}{4} \\ &= -\left(\int_{x_1}^x k dx - \frac{\pi}{4} - \eta\right), \quad \eta \equiv \int_{x_1}^{x_2} k dx - \frac{\pi}{2} \end{aligned}$$

により、式 2.1.27 の解は $k^{-1/2} \cos\left(\int_{x_1}^x k dx - \frac{\pi}{4} - \eta\right)$ とも書ける。これが式 2.1.25 の解と領域 1 で滑らかに結びつくためには、 η が 0 または π の整数倍になること、すなわち

$$\int_{x_1}^{x_2} k dx = \left(n + \frac{1}{2}\right) \pi \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (2.1.28)$$

となることが要求される。この式よりエネルギー固有値 E_n が求まる。 n は領域 1 での WKB 解の節の数に一致する。式 2.1.28 は k を代入すると

$$2 \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{2m[E - V(x)]} dx = 2\pi\hbar \left(n + \frac{1}{2}\right) \quad (2.1.29)$$

とも書けて、前期量子論における Bohr-Sommerfeld の量子化規則に対応した形になっていることがわかる。式 2.1.22 のように、この近似は転回点が数波長はなれているか、あるいは n が 1 に比べて大きいときにより近似である。しかし、式 2.1.28 を調和振動子のポテンシャル $V(x) = Kx^2/2$ について計算すると、たまたま正しいエネルギー準位 $E_n = \hbar\sqrt{K/m}(n + 1/2)$ が得られる。よって WKB 近似は分子の電子ポテンシャルの場合にもよい近似を与えると考えられ、次節ではこの量子化条件を用いて分子の振動準位を近似する。

2.1.3 分子準位と m_e/m_p の変化

以上の準備を踏まえ、この節では分子の振動準位が電子・陽子質量比 $\mu \equiv m_e/m_p$ の変化に対して敏感になることを [17] に基づいて説明する。特に、異なる電子ポテンシャルに属しエネルギーが近い 2 つの振動準位が μ の変化へ高い増幅率をもつことを示す。

始めに、感度を示す 2 つのパラメータを定義する。1 つ目は、 μ の変化の割合 $\Delta\mu/\mu$ に対する、エネルギー間隔 Ω の絶対的な変化

$$\partial_\mu\Omega \equiv \frac{\partial\Omega}{\partial(\ln\mu)} = \frac{\partial\Omega}{\partial\mu/\mu} \quad (2.1.30)$$

である。 Ω の不確かさが $\delta\Omega = \Gamma/S$ (Γ : 線幅, S : S/N 比) で測れるとき、 $\Delta\mu/\mu$ は不確かさ $\delta(\Delta\mu/\mu) = \delta\Omega/\partial_\mu\Omega = (\Gamma/\partial_\mu\Omega)S^{-1}$ で測定できる。2 つ目は Ω の相対的な変化

$$\frac{\partial_\mu\Omega}{\Omega} = \frac{\partial\Omega/\Omega}{\partial\mu/\mu} \quad (2.1.31)$$

であり、これは実験上重要なパラメータである。例えば Ω を不確かさ $\delta\Omega_c/\Omega_c$ の reference clock で測るとき、 Ω は $\delta\Omega_{\min} = \Omega(\delta\Omega_c/\Omega_c)$ より精度良く測ることができないこと、Doppler シフトのような効果の多くが Ω に比例していることが、 $\partial_\mu\Omega/\Omega$ が重要な理由として [17] で挙げられている。式 2.1.31 を使うと、

$$\frac{\Delta\Omega}{\Omega} \cong \frac{\partial_\mu\Omega}{\Omega} \times \left(\frac{\Delta\mu}{\mu}\right) \quad (2.1.32)$$

により、 μ の相対的な変化が $\partial_\mu\Omega/\Omega$ 倍だけ増幅されて Ω の相対的な変化に現れることになる (1.2 節で述べた増幅率に相当)。

分子準位の μ に対する依存性を調べるため、 m_e を固定し m_p が変化するものとして考える。こうすると、式 2.1.3 から求まるポテンシャルは m_p にはよらないので、電子ポテンシャルが固定され考えやすくなる。

分子の振動準位 E_v を前節で導いた量子化条件 (式 2.1.28, 2.1.29)

$$\int_{R_i}^{R_o} \sqrt{2M[E_v - V(R)]}dR = \hbar\pi\left(v + \frac{1}{2}\right) \quad (2.1.33)$$

で近似する。ただし、 R : 核間距離, $V(R)$: ポテンシャル (最小値 0 とする), $R_i(R_o)$: 内側 (外側) の転回点, M : 原子核の換算質量とし、 $M \propto m_p \propto \mu^{-1}$ である (図 2.1.3)。 E_v に対するエネルギー感度を次式で定義する:

$$\partial_\mu E_v \equiv \frac{\partial E_v}{\partial \mu / \mu} \quad (2.1.34)$$

このように定義すると、例えば v_1, v_2 の 2 つの振動準位間で μ を測るとき、 $\Omega = |E_{v_1} - E_{v_2}|$, $\partial_\mu \Omega = |\partial_\mu E_{v_1} - \partial_\mu E_{v_2}|$ と計算できる。 $\partial_\mu E_v$ は、式 2.1.33 の両辺をそれぞれ μ, v で微分して得られる 2 式

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_v}{\partial \mu} \int_{R_i}^{R_o} \frac{M}{\sqrt{2M[E_v - V(R)]}} dR &= \frac{\hbar\pi}{2\mu} \left(v + \frac{1}{2} \right) \\ \frac{\partial E_v}{\partial v} \int_{R_i}^{R_o} \frac{M}{\sqrt{2M[E_v - V(R)]}} dR &= \hbar\pi \end{aligned}$$

から、状態密度を $\rho(E_v) = (\partial E_v / \partial v)^{-1} \approx (E_v - E_{v-1})^{-1}$ として

$$\partial_\mu E_v = \frac{v + \frac{1}{2}}{2\rho(E_v)} \quad (2.1.35)$$

と求まる。以下でこれの振る舞いを見ていく。

まずポテンシャルの最小値の周りの v が小さい範囲では、 $V(R)$ は調和振動子でよく近似できる。このとき $E_v = \hbar\omega \left(v + \frac{1}{2} \right)$ だから、 $\rho(E_v) = (\hbar\omega)^{-1}$ となり、 $\partial_\mu E_v = \hbar\omega \left(v + \frac{1}{2} \right) / 2 = E_v / 2$ である。従って、調和振動子の近似が成り立つ範囲では、 $\partial_\mu E_v$ は E_v に比例して上がっていく。 v が大きくなると $V(R)$ の非調和項が効いてくるようになり、 E_v は解離極限 D に近づく。 D の近くでは準位の間隔が狭くなっていき、 $\rho(E_v)$ が大きくなるため、 $\partial_\mu E_v$ は減少する。以上より、 $\partial_\mu E_v$ はどこか中間の v で最大値を持つ。図 2.1.4 は [17] の論文で Cs_2 分子についてエネルギー感度を計算し、束縛エネルギー $E_b(v) \equiv E_v - D$ を横軸にとったプロットである。エネルギー感度が実際に上で述べたような振る舞いをしているのが確認でき、 μ の変化に敏感な分子準位があることがわかる。

このような振る舞いを見ると、エネルギー感度が最大になる準位と最小になる準位の間は $\partial_\mu \Omega$ が最大になるから μ の変化検出に適するように思われる。しかし、この 2 準位間はエネルギー間隔 Ω が大きいから、 $\partial_\mu \Omega / \Omega$ が小さくなってしまふ。そこで、異なる電子ポテンシャル X (最小値 0) と Y (最小値 T_Y) の 2 つが重なっている場合を考える (図 2.1.3 の青と赤の曲線で示した)。この状況では、 X の高い振動準位 $v_X \gg 1$ と、 Y の低い振動準位 $v_Y \ll v_X$ のエネルギーがきわめて近くなる場合が有り得て、 Ω を小さくできる。このとき $\partial_\mu E_{v_X}^{(X)} \gg \partial_\mu E_{v_Y}^{(Y)}$ であるなら、 $\partial_\mu \Omega / \Omega$ として非常に大きな値を得られる。式 2.1.32 により、このような準位の間隔は μ の変化へ高い増幅率を持つ。

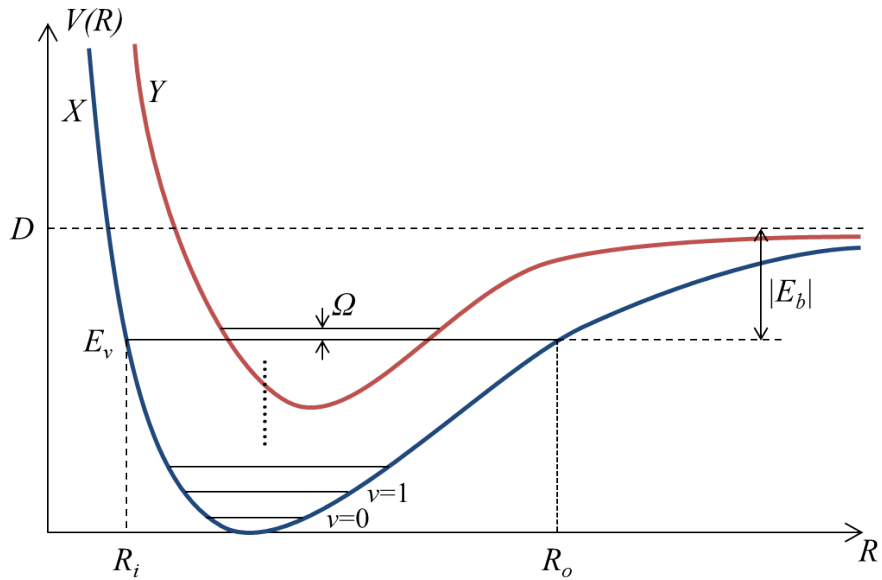
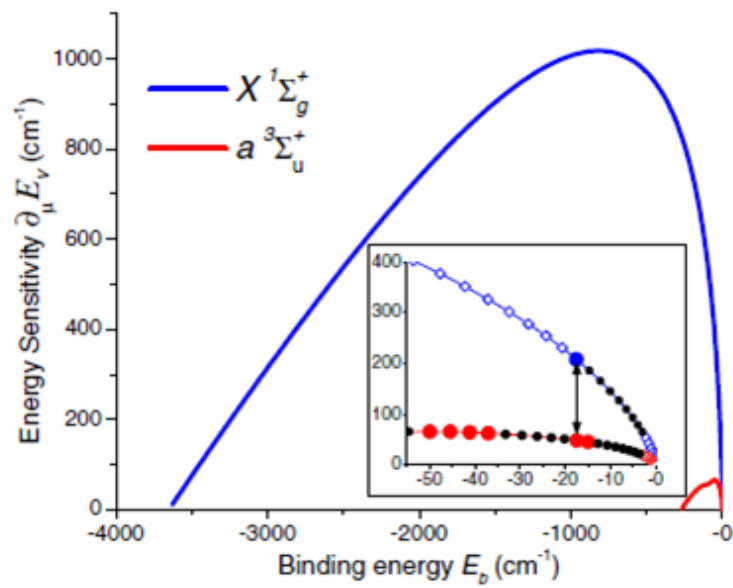


図 2.1.3 本節のポテンシャルと振動準位の概念図

図 2.1.4 Cs_2 分子について計算したエネルギー感度 ([17] より抜粋)

Cs_2 分子や今回扱う $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子では上で述べた状況が実現されている。これらの分子には基底状態の電子ポテンシャルとして **singlet** と **triplet** のもの (それぞれ $X^1\Sigma^+$, $a^3\Sigma^+$ と表記される) が存在し、前者が X , 後者が Y に対応する。 Cs_2 分子については図 2.1.4 の差込み図中の矢印で示された 2 点がエネルギーがきわめて近い準位で、 $\partial_\mu E_{v_X}^{(X)} \gg \partial_\mu E_{v_a}^{(a)}$ である ($v_X = 138, v_a = 37$)。この振動準位の組では、 $\partial_\mu \Omega \approx 5 \times 10^{12}$ Hz, $\partial_\mu \Omega / \Omega \approx 1000$ と見積もられている。

次節では、 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の振動準位を数値的に求める。その結果から、本節で述べた方法でエネルギー感度の計算をし、エネルギーが近い振動準位の組を見つける。

2.1.4 LEVEL による計算

LEVEL とは、Waterloo 大学の R. J. Le Roy 氏が公開しているプログラムであり [30]、分子の振動準位を与える 1 次元の Schrödinger 方程式 (式 2.1.7)

$$-\frac{\hbar^2}{2M} \frac{d^2 \Psi_{v,J}(r)}{dr^2} + V_J(r) \Psi_{v,J}(r) = E_{v,J} \Psi_{v,J}(r) \quad (2.1.36)$$

を原子核の質量とポテンシャルを与えてやることで数値的に解くことができる。具体的には [31] のような方法で式 2.1.36 を刻み幅 RH の差分方程式にし、 $\Psi_{v,J}(r)$ を $\text{RMIN} \leq r \leq r_X$ と $\text{RMAX} \geq r \geq r_X$ の両側から求め、 r_X での傾きの不連続性から $E_{v,J}$ を修正するという計算を繰り返して解いている。 RMIN と RMAX は、 $V_J(r) > E_{v,J}$ の範囲で転回点から十分離れた点をとる。この計算には 2 点ずつの初期値が必要で、転回点の外側での波動関数の減衰を考慮して $\Psi_{v,J}(r = \text{RMIN}) = 0, \Psi_{v,J}(r = \text{RMIN} + \text{RH})$: 非零の任意定数、および $\Psi_{v,J}(r = \text{RMAX})$: 任意定数、 $r = \text{RMAX} - \text{RH}$ では WKB 近似の波動関数の値

$$\Psi_{v,J}(r) \propto \frac{1}{[V_J(r) - E_{v,J}]^{1/4}} \exp\left(-\int^r \frac{\sqrt{2M[V_J(r) - E_{v,J}]}}{\hbar} dr\right) \quad (2.1.37)$$

がとられている。

我々はこの LEVEL プログラムを用いて、 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ の $X^1\Sigma^+$ と $a^3\Sigma^+$ に対する振動準位を数値計算した。その際、それぞれのポテンシャルとしては [26] で示されている値を用いた (グラフは図 2.1.1 の赤線: $X^1\Sigma^+$, 青線: $a^3\Sigma^+$)。式 2.1.34 と $\mu \propto M^{-1}$ から、換算質量を M から M' に変えたときにエネルギーの値 E_v が E'_v になったとすると、エネルギー感度は

$$\partial_\mu E_v = -\frac{\partial E_v}{\partial M/M} \approx -\frac{E'_v - E_v}{(M' - M)/M} \quad (2.1.38)$$

で求められる。この方法でエネルギー感度を計算し、束縛エネルギーに対してプロットしたものが図 2.1.5 である。 Cs_2 の場合 (図 2.1.4) と同様、前節で述べたような振る舞いが見られる。

求めた振動準位について、 $X^1\Sigma^+$ と $a^3\Sigma^+$ が重なっている所で μ の変化検出に適する準位を探す。図 2.1.6 は triplet が存在する範囲で図 2.1.5 を拡大して見たもので、各点が振動準位に対応している。図のように、低い準位 (図 2.1.6 で左側にある準位) ほど $\partial_\mu\Omega$ は大きくとれる。しかし、大きな $\partial_\mu\Omega/\Omega$ を得るには Ω が小さい、つまり singlet と triplet のエネルギーが近い必要がある。エネルギーが近い組の候補として $v_X = 91 - v_a = 22$ と $v_X = 86 - v_a = 16$ がある。それより左側では、singlet と triplet の mixing (§ 2.2) まで考慮すると、実験的に適した組はない (マイクロ波遷移が困難)。この 2 組のうち $v_X = 91 - v_a = 22$ については本研究室助教の小林淳氏によってすでに調べられ、 $\partial_\mu\Omega = 3534$ GHz, $\partial_\mu\Omega/\Omega = 1448$ と見積もられた。だが図 2.1.6 のように、 $v_X = 86 - v_a = 16$ 間は $v_X = 91 - v_a = 22$ 間よりも $\partial_\mu\Omega$ が大きく、超微細構造 (hyperfine structure, § 2.2) 間での Ω はより小さく取れると予想される。故に $v_X = 86 - v_a = 16$ 間は $\partial_\mu\Omega/\Omega$ が更に大きな値をとり得て、 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ を使う μ の変化の検出では最適であることが期待される。本研究の目的は、 $v_X = 86 - v_a = 16$ の構造を分光によって調べて Ω , $\partial_\mu\Omega$, $\partial_\mu\Omega/\Omega$ の値を実際に求め、この準位での μ の変化の検出について考察することである。

分光には誘導ラマン断熱遷移 (STIRAP) と呼ばれる方法を用いるが (§ 2.3)、これに必要な光の波長も LEVEL によって概算した。STIRAP は先行研究 [18] によって $(3)^1\Sigma^+(v = 41, J = 1)$ と表記される適切な中間状態がすでに選び出されている。このポテンシャルとして [27] に示された値を用い (グラフは図 2.1.1 の緑色の線)、 $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ との離調を LEVEL で計算すると 872.5 nm 程度であった。3 章ではこの光源の作製について述べる。

なお、LEVEL ではエネルギー準位だけでなく、数値的に求めた波動関数を用いて Franck-Condon Factor (§ 2.2) などの値も計算できる。

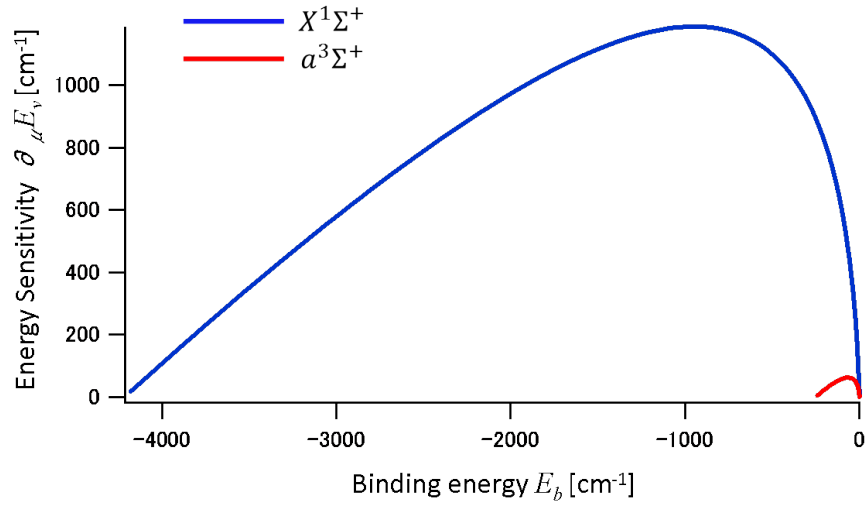


図 2.1.5 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子について計算したエネルギー感度。LEVEL の数値計算を通して求めた。

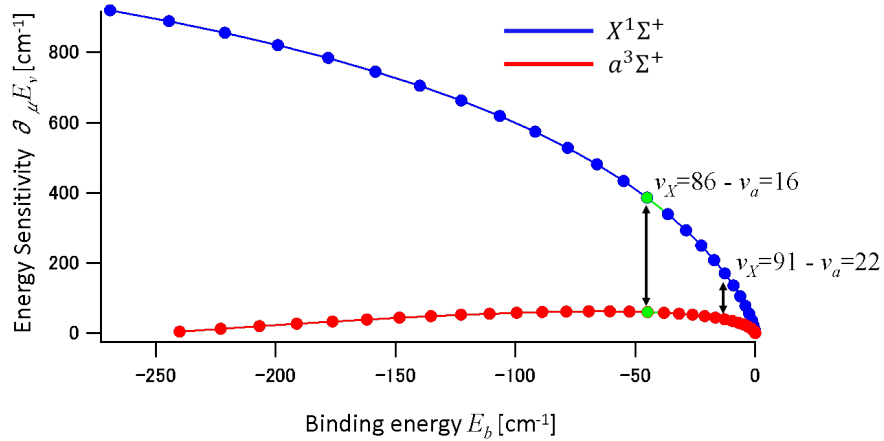


図 2.1.6 図 2.1.5 の一部を拡大したもの。緑色の点为本論文で述べる準位である。

2.2 KRb 分子の hyperfine structure

LEVEL によって KRb 分子の振動準位のエネルギーが計算できるが、実際のエネルギー準位は hyperfine structure を持っており、さらに細かく分裂している。本節では、その分裂を計算する方法を述べる。また、計算の過程においてマイクロ波遷移の実行において重要な Singlet-Triplet 間の mixing も計算することができる。

まず今回の実験で用いる Singlet の準位 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ と Triplet の準位 $a^3\Sigma^+(v=16, J=0)$ の 2 つのみが存在するとしたときを考える。K、Rb の電子スピン、核スピンはともに $1/2, 3/2$ であり $S_K = S_{Rb} = 1/2, I_K = I_{Rb} = 3/2$ となる。hyperfine structure を計算するために必要なパラメータは hyperfine 分裂する前の 2 準位の束縛エネルギー、2 準位間の Franck-Condon Factor (以下 FCF)、Rb の hyperfine constant A_{Rb} 、K の hyperfine constant A_K である。 A_{Rb}, A_K は本来核間距離に依存した電子の軌道から計算する値であるが、本研究ではそこまでの計算は行えていない。ただ、KRb 分子は核間距離が大きく原子のときの値がよい近似値となることが知られている [26] ため、我々はまず原子のときの値を用いて計算を行い実験後の fitting において A_{Rb}, A_K の値も fitting パラメータとして扱うことにした。Franck-Condon Factor とは振動準位間の遷移の強さを表す値であり、振動準位の空間波動関数の重なり積分の 2 乗によって求められる。(後述の F_{i-j} の 2 乗。) FCF の大きさは Singlet-Triplet 間の mixing に関わってきていて、mixing がある程度大きくなければ最終的に行いたいマイクロ波遷移がうまくいかない。mixing の大きさは後述の行列の計算によって求められるが、およそ (FCF)/(振動準位間のエネルギー差) に比例している。

KRb 分子は核間距離が大きいためそれぞれの原子の電子スピンと核スピンのカップリングだけを考えればよいとすると、そのハミルトニアン \mathcal{H}_0 は式 (2.2.1) のように書ける [26]。

$$\mathcal{H}_0 = A_{Rb} \mathbf{S}_{Rb} \cdot \mathbf{I}_{Rb} + A_K \mathbf{S}_K \cdot \mathbf{I}_K \quad (2.2.1)$$

$\mathbf{S}_{Rb}, \mathbf{I}_{Rb}, \mathbf{S}_K, \mathbf{I}_K$ はそれぞれ Rb, K の電子スピン、核スピンである。全電子スピンを $\mathbf{S} = \mathbf{S}_{Rb} + \mathbf{S}_K$ 、 m_S, m_{Rb}, m_K をそれぞれ S, I_{Rb}, I_K の磁気量子数として、このハミルトニアンを基底 $|S, m_S, m_K, m_{Rb}\rangle$ を用いて行列表示する。また、このハミルトニアンにおいて $m_F = m_S + m_K + m_{Rb}$ が異なる状態間のカップリングが存在しない。そのため $m_F = 0$ のときのみを考えれば磁場がないときの hyperfine structure がわかる。以上を踏まえてハミルトニアンを行列表示すると図 2.2.1 のような 14×14 の対称行列となる。上から $S=1$ 、つまり Triplet となる 10 個、 $S=0$ 、つまり Singlet となる 4 個を並べると Triplet と Singlet で基底を大きく 2 つに分けることができ、行列は大きく 4 つに分けることができる。この

ようにわけた4つを図2.2.1のようにTT,TS,ST,SSと名付ける。TT,TS,ST,SSは式2.2.2,式2.2.3,式2.2.4,式2.2.5のようになっている。

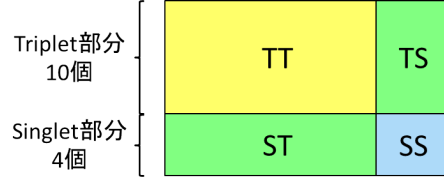


図2.2.1 ハミルトニアン行列表示。大きく4つのブロックに分けられる。

$$TT = \begin{pmatrix} \frac{A_{Rb}}{4} - \frac{3A_K}{4} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{A_{Rb}}{4} - \frac{A_K}{4} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & \frac{\sqrt{2}A_K}{2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{3A_{Rb}}{4} + \frac{A_K}{4} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & \frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & \frac{\sqrt{2}A_K}{2} & 0 \\ 0 & \frac{\sqrt{2}A_K}{2} & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} \\ 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 & -\frac{3A_{Rb}}{4} + \frac{A_K}{4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}A_K}{2} & \frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & 0 & 0 & -\frac{A_{Rb}}{4} - \frac{A_K}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 & \frac{A_{Rb}}{4} - \frac{3A_K}{4} \end{pmatrix} \quad (2.2.2)$$

$$TS = \begin{pmatrix} -\frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & \frac{\sqrt{2}A_K}{2} & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} \\ \frac{3A_{Rb}}{4} + \frac{3A_K}{4} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{A_{Rb}}{4} + \frac{A_K}{4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{A_{Rb}}{4} - \frac{A_K}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\frac{3A_{Rb}}{4} - \frac{3A_K}{4} \\ -\frac{\sqrt{6}A_K}{4} & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{\sqrt{2}A_K}{2} & \frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{\sqrt{6}A_K}{4} & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} \end{pmatrix} \quad (2.2.3)$$

$$ST = \begin{pmatrix} -\frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 & \frac{3A_{Rb}}{4} + \frac{3A_K}{4} & 0 & 0 & 0 & -\frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 \\ \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & -\frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & 0 & 0 & \frac{A_{Rb}}{4} + \frac{A_K}{4} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & -\frac{\sqrt{2}A_K}{2} & 0 \\ 0 & \frac{\sqrt{2}A_K}{2} & -\frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} & 0 & 0 & -\frac{A_{Rb}}{4} - \frac{A_K}{4} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{2}A_{Rb}}{2} & -\frac{\sqrt{6}A_K}{4} \\ 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_K}{4} & 0 & 0 & 0 & -\frac{3A_{Rb}}{4} - \frac{3A_K}{4} & 0 & 0 & \frac{\sqrt{6}A_{Rb}}{4} \end{pmatrix} \quad (2.2.4)$$

$$SS = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.2.5)$$

TT,SSの対角成分にその振動準位の束縛エネルギー ($v=i$ の束縛エネルギーを E_i と書く)を加え、TS,STに各振動状態の空間波動関数の重なり積分 $\langle X^1 \Sigma^+, v=i | a^2 \Sigma^+, v=j \rangle \equiv F_{i-j}$ (FCFは F_{i-j} の2乗)をかけたものが2準位の hyperfine structureを表すハミ

ルトニアン \mathcal{H}_1 となり、式 2.2.6 のようにかける。(E_i, F_{i-j} は LEVEL による計算で得られる。))

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_1 &= \begin{pmatrix} TT + E_{16}I & TS * F_{86-16} \\ ST * F_{86-16} & SS + E_{86}I \end{pmatrix} \quad (I \text{ は単位行列}) \\ &\equiv \begin{pmatrix} T_{16}T_{16} & T_{16}S_{86} \\ S_{86}T_{16} & S_{86}S_{86} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.2.6)$$

この \mathcal{H}_1 の固有値を計算すると 14 個の値が出てきて、それが $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の hyperfine level のエネルギーとなり、図 2.2.2 のように分かれたそれぞれのエネルギー準位の位置を計算することができる。基底状態において、 $F_{\text{Rb}} = S + I_{\text{Rb}}$ がよい量子数となっていて、まず F_{Rb} の値で大きく分かれ、そこからそれぞれ $F = F_{\text{Rb}} + I_{\text{K}}$ の値によって分かれるように書くと hyperfine structure をうまく記述できる。また、固有ベクトルは振動準位を行列の各基底で展開したときの係数となっており、Singlet の固有値に対する固有ベクトルの Triplet 部分 ($S=1$) の基底の係数の 2 乗和がその Singlet 状態がどれだけ Triplet 状態と mixing をもつかの大きさとなる。 $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ 間での mixing は約 2%(準位間のエネルギー差は約 4.8GHz)、 $X^1\Sigma^+(v = 91, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 22, J = 0)$ 間での mixing は約 10%(準位間のエネルギー差は約 3.6GHz) である。図 2.1.6 において $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ よりも左側にあつて、準位間のエネルギー差の小さい組み合わせとして例えば $X^1\Sigma^+(v = 80, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 8, J = 0)$ を考えると、準位間のエネルギー差は約 1GHz と小さいが、mixing が $4 \times 10^{-5}\%$ と非常に小さくなっていて、マイクロ波遷移を行うのに非常に強いマイクロ波が必要となり実験が困難である。全ての振動準位間で mixing を計算してみると、図 2.1.6 において $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ よりも左側で mixing が 0.01% 以上の組み合わせは存在しないことがわかる。

2.2.1 行列の拡張

実際の KRb 分子は $X^1\Sigma^+$ が 101 個、 $a^3\Sigma^+$ が 33 個の振動準位を持っていてそれらの準位も $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の hyperfine structure に影響を与える。そのため $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ 以外の寄与も考えた方がよい計算となるだろう。まず $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0), X^1\Sigma^+(v = i, J = 0), a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0), a^3\Sigma^+(v = j, J = 0)$ の 4 準位があるときを考えると式 (2.2.6) のときと同じように、TT の部分は $T_{86}T_{86}, T_jT_j$ 、TS の部分は $T_{16}S_{86}, T_{16}S_i, T_jS_{86}, T_jS_i$ 、ST の部分は $S_{86}T_{16}, S_{86}T_j, S_iT_{86}, S_iT_j$ 、SS の部分は $S_{86}S_{86}, S_iS_i$ という組み合わせができる。これらを行列上に並べたものがこの 4 準位

の hyperfine structure を計算するためのハミルトニアンとなり、下のようになる。

$$\begin{pmatrix} T_{86}T_{86} & 0 & T_{16}S_{86} & T_{16}S_i \\ 0 & T_jT_j & T_jS_{86} & T_jS_i \\ S_{86}T_{16} & S_{86}T_j & S_{86}S_{86} & 0 \\ S_iT_{86} & S_iT_j & 0 & S_iS_i \end{pmatrix}$$

このようにして Singlet の $v=0\sim 100$ 、Triplet の $v=0\sim 32$ についての全ての組み合わせをならべたものが下のようになり、これが他の振動準位の影響を考慮したときのハミルトニアンとなる。

$$\begin{array}{c} \text{Triplet} \\ \text{Singlet} \end{array} \left\{ \begin{array}{c} \overbrace{\begin{matrix} T_0T_0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & T_1T_1 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & T_{32}T_{32} \end{matrix}}^{\text{Triplet}} & \overbrace{\begin{matrix} T_0S_0 & T_0S_1 & \dots & T_0S_{100} \\ T_1S_0 & T_1S_1 & \dots & T_1S_{100} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ T_{32}S_0 & T_{32}S_1 & \dots & T_{32}S_{100} \end{matrix}}^{\text{Singlet}} \\ \left(\begin{array}{cccc} S_0T_0 & S_0T_1 & \dots & S_0T_0 \\ S_1T_0 & S_1T_1 & \dots & S_0T_0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ S_{100}T_0 & S_{100}T_1 & \dots & S_{100}T_{32} \end{array} \right. & \left. \begin{array}{cccc} S_0S_0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & S_1S_1 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & S_{100}S_{100} \end{array} \right) \end{array}$$

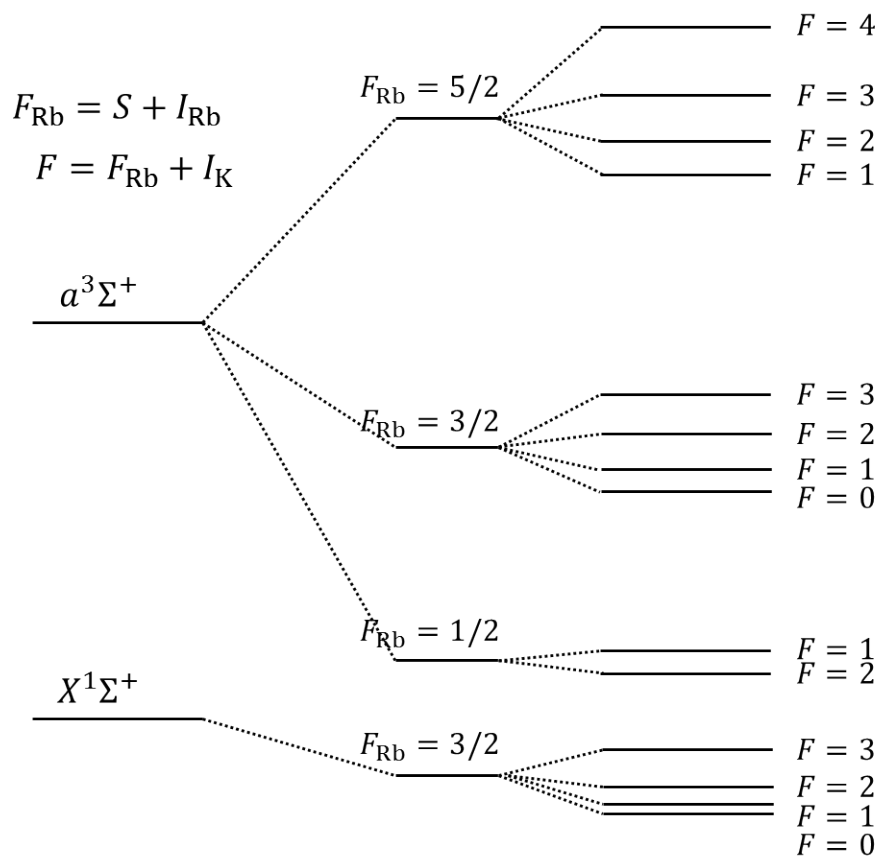


図 2.2.2 $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の hyperfine structure

2.3 誘導ラマン断熱遷移 (STIRAP)

この節では誘導ラマン断熱遷移 (Stimulated Raman Adiabatic Passage、以下 STIRAP) について述べる。Feshbach 会合や Photoassociation(PA) によって作られた分子は、回転に関しては基底状態にあるが、振動に関してはエネルギーの高い状態にある。本研究では PA によってまず $v=91$ の振動準位に分子を作り、それを $v=86$ や振動基底状態へ移すために STIRAP を用いている。ある 3 準位系 ($|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$) において初め全ての分子が $|1\rangle$ にあり、それを $|3\rangle$ へ移すことを考える。まず $|1\rangle$ から $|2\rangle$ の遷移が起こるような周波数の光を入射すると定常状態において $|1\rangle, |2\rangle$ に 50% ずつの分子がいる。素早くこの光を切り、すぐに $|3\rangle$ から $|2\rangle$ への遷移が起こるような周波数の光を入射すると、定常状態において $|2\rangle$ にあった分子がさらに半分ずつにわかれ $|2\rangle, |3\rangle$ には最初の 25% ずつの分子がいることになる。結果として全体の 25% の分子を移すことができる。この方法は stimulated emission pumping(SEP)[28] という方法である。STIRAP は 3 準位系において、原理的には 100% の効率で、ある準位から別の準位へと分子を遷移させることができるという強力な方法である。

2.3.1 STIRAP の理論

3 準位系のハミルトニアン

図 2.3.1 のような 3 準位系のハミルトニアンについて考える。状態 $|1\rangle, |2\rangle$ 間の遷移周波数から離調 δ_p をつけた光を pump 光、状態 $|2\rangle, |3\rangle$ 間の遷移周波数から離調 δ_s をつけた光を Stokes 光と呼ぶ。pump 光と Stokes 光の周波数はそれぞれ ω_p, ω_s であり、この系の中の電場は pump 光、Stokes 光の単位分極ベクトルをそれぞれ $\boldsymbol{\varepsilon}_p, \boldsymbol{\varepsilon}_s$ 、電場振幅をそれぞれ E_p, E_s として、 $\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2}(\boldsymbol{\varepsilon}_p E_p e^{i\omega_p t} + \boldsymbol{\varepsilon}_s E_s e^{i\omega_s t} + c.c.)$ となっている。Schrödinger 方程式は

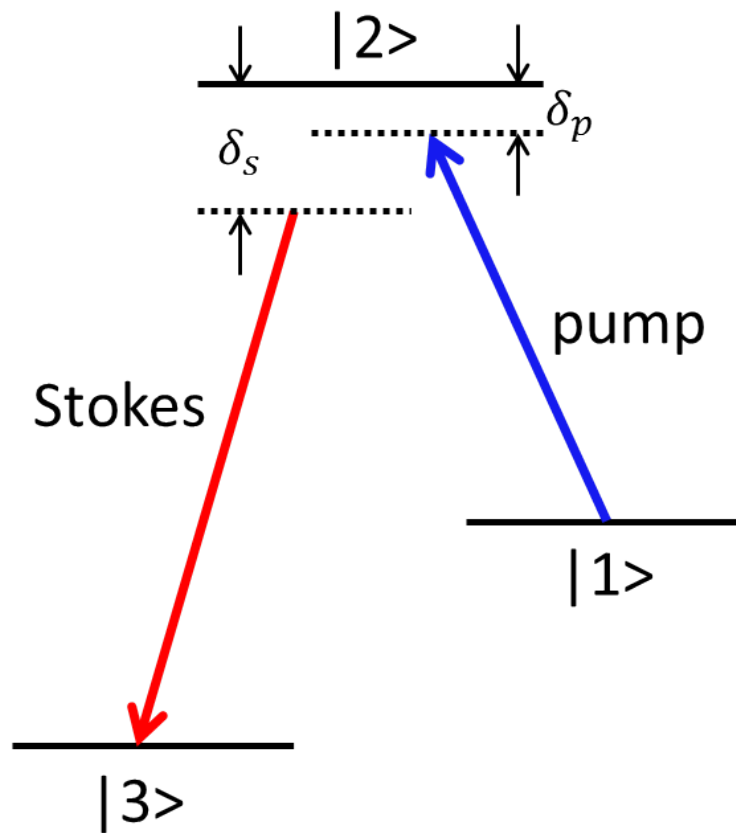
$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \boldsymbol{\Psi}(t) = (\mathbf{H}_{atom} - \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(t)) \boldsymbol{\Psi}(t) \quad (2.3.1)$$

と書ける。ここで $\mathbf{H}_{atom}|n\rangle = E_n|n\rangle$ である。 \mathbf{d} は遷移双極子モーメントであり、

$$\mathbf{d} = \begin{pmatrix} 0 & \mathbf{d}_{12} & 0 \\ \mathbf{d}_{21} & 0 & \mathbf{d}_{23} \\ 0 & \mathbf{d}_{32} & 0 \end{pmatrix} \quad (2.3.2)$$

とかける。 $\boldsymbol{\Psi}(t)$ は 3 つの状態 $|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle$ の重ねあわせとして

$$\boldsymbol{\Psi}(t) = \sum_{n=1}^3 C_n(t) e^{-i\phi_n(t)} |n\rangle \quad (2.3.3)$$

図 2.3.1 Λ 型の3準位系

と書ける。ここで、

$$|1\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, |2\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, |3\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

である。式 (2.3.1) に式 (2.3.3) を代入して、それぞれの状態の係数ごとに書くと

$$\begin{cases} \frac{dC_1}{dt} = iC_1 \frac{d\phi_1}{dt} - \frac{i}{\hbar} E_1 C_1 + \frac{i}{\hbar} (\mathbf{d}_{12} \cdot \mathbf{E}) C_2 e^{-i(\phi_2 - \phi_1)} \\ \frac{dC_2}{dt} = iC_2 \frac{d\phi_2}{dt} - \frac{i}{\hbar} E_2 C_2 + \frac{i}{\hbar} ((\mathbf{d}_{21} \cdot \mathbf{E}) C_1 e^{-i(\phi_1 - \phi_2)} + (\mathbf{d}_{23} \cdot \mathbf{E}) C_3 e^{-i(\phi_3 - \phi_2)}) \\ \frac{dC_3}{dt} = iC_3 \frac{d\phi_3}{dt} - \frac{i}{\hbar} E_3 C_3 + \frac{i}{\hbar} (\mathbf{d}_{32} \cdot \mathbf{E}) C_2 e^{-i(\phi_2 - \phi_3)} \end{cases} \quad (2.3.4)$$

となる。

ここでエネルギー準位と位相因子を $|1\rangle$ を基準にして、

$$\begin{cases} E_1 = 0 \\ E_2 = \hbar(\omega_p + \delta_p) \\ E_3 = \hbar(\omega_p + \delta_p) - (\omega_s + \delta_s) = \hbar(\omega_p - \omega_s + \delta) \end{cases} \quad (2.3.5)$$

$$\begin{cases} \phi_1 = 0 \\ \phi_2 = \omega_p t \\ \phi_3 = (\omega_p - \omega_s)t \end{cases} \quad (2.3.6)$$

ととる。 $\delta_p - \delta_s = \delta$ としておりこの δ を二光子離調と呼ぶ。これらを代入すると式 (2.3.4) は、

$$\begin{cases} \frac{dC_1}{dt} = \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{12} \cdot \mathbf{E} C_2 e^{-i\omega_p t} \\ \frac{dC_2}{dt} = -i\delta_p C_2 + \frac{i}{\hbar} ((\mathbf{d}_{21} \cdot \mathbf{E}) C_1 e^{i\omega_p t} + (\mathbf{d}_{23} \cdot \mathbf{E}) C_3 e^{i\omega_s t}) \\ \frac{dC_3}{dt} = -i\delta C_3 + \frac{i}{\hbar} \mathbf{d}_{32} \cdot \mathbf{E} C_2 e^{-i\omega_s t} \end{cases} \quad (2.3.7)$$

となる。回転波近似を適用して振動項を無視し、Rabi 周波数 $\Omega_p \equiv -\frac{\mathbf{d}_{21} \cdot \mathbf{E}_p}{\hbar} E_p$, $\Omega_s \equiv -\frac{\mathbf{d}_{32} \cdot \mathbf{E}_s}{\hbar} E_s$ を用いて式 (2.3.7) を書きなおすと

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{i}{2}\Omega_p^* & 0 \\ -\frac{i}{2}\Omega_p & -i\delta_p & -\frac{i}{2}\Omega_s^* \\ 0 & -\frac{i}{2}\Omega_s & -i\delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{pmatrix} \quad (2.3.8)$$

となり、 $\mathbf{C} \equiv \begin{pmatrix} C_1 \\ C_2 \\ C_3 \end{pmatrix}$, $\mathbf{V} \equiv \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \delta_p & 0 \\ 0 & 0 & \delta \end{pmatrix}$, $\mathbf{\Omega} \equiv \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p^* & 0 \\ \Omega_p & 0 & \Omega_s^* \\ 0 & \Omega_s & 0 \end{pmatrix}$ とすると

$$\frac{d}{dt} \mathbf{C} = -i(\mathbf{V} + \mathbf{\Omega})\mathbf{C} \quad (2.3.9)$$

となる。よってハミルトニアン $\mathcal{H} = \hbar(\mathbf{V} + \mathbf{\Omega})$ は

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p^* & 0 \\ \Omega_p & 2\delta_p & \Omega_s^* \\ 0 & \Omega_s & 2\delta \end{pmatrix} \quad (2.3.10)$$

定常解

$\delta = 0$ のときの解を考える。このときハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p^* & 0 \\ \Omega_p & 2\delta_p & \Omega_s^* \\ 0 & \Omega_s & 0 \end{pmatrix} \quad (2.3.11)$$

となり、固有値は $\lambda_0 = 0$, $\lambda_{\pm} = \frac{\hbar}{2}(\delta_p \pm \sqrt{\delta_p^2 + \Omega_p^2 + \Omega_s^2})$ であり、固有ベクトルは

$$\mathbf{v}_0 = \frac{1}{\sqrt{\Omega_p^2 + \Omega_s^2}} \begin{pmatrix} -\Omega_s^* \\ 0 \\ \Omega_p \end{pmatrix} \quad (2.3.12)$$

$$\mathbf{v}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2(\delta_p^2 + \Omega_p^2 + \Omega_s^2 \pm \sqrt{\delta_p^2 + \Omega_p^2 + \Omega_s^2})}} \begin{pmatrix} \Omega_p^2 \\ \delta_p \pm \sqrt{\delta_p^2 + \Omega_p^2 + \Omega_s^2} \\ \Omega_s \end{pmatrix} \quad (2.3.13)$$

である。ここで、

$$\begin{cases} \tilde{\omega}^2 = \delta_p^2 + \Omega_p^2 + \Omega_s^2, \Omega_0 = \sqrt{\Omega_p^2 + \Omega_s^2} \\ \sin 2\phi = \frac{\Omega_0}{\tilde{\omega}}, \cos 2\phi = \frac{\delta_p}{\tilde{\omega}} \\ \sin \theta = \frac{\Omega_s}{\Omega_0}, \cos \theta = \frac{\Omega_p}{\Omega_0}, \tan \theta = \frac{\Omega_p}{\Omega_s} \end{cases}$$

とおくと、固有ベクトルは

$$\mathbf{v}_0 = \begin{pmatrix} -\cos \theta \\ 0 \\ \sin \theta \end{pmatrix} \quad (2.3.14)$$

$$\mathbf{v}_{\pm} = \sqrt{\frac{\tilde{\omega}}{2(\tilde{\omega} + 1)}} \begin{pmatrix} \sin \theta \sin 2\phi \\ \cos 2\phi \pm 1 \\ \cos \theta \sin 2\phi \end{pmatrix} \quad (2.3.15)$$

となる。式 (2.3.14) を見ると、固有ベクトルに $|2\rangle$ 状態が含まれていないことがわかる。この状態を **dark state** と呼ぶ。dark state において、分子のエネルギー準位が $|2\rangle$ になることはない。また $|1\rangle, |3\rangle$ 状態の値は θ にのみよっていて、これは **pump** 光と **Stokes** 光の **Rabi** 周波数の比、つまり電場の強さの比で決まっている。したがってまず **Stokes** 光だけを入れておいて、そこから **Stokes** 光の強さを下げながら **pump** 光の強さを上げていくと、 $\theta = 0$ から $\theta = \frac{\pi}{2}$ という操作ができる。こうすることによって **Stokes** 光だけが入っているときに $|1\rangle$ 状態にあるものをすべて $|3\rangle$ 状態に遷移させることができる。これが **STIRAP** の原理である。図 2.3.2 は実験で使用した **pump** 光と **Stokes** 光の形である。2つのパルスが重なっている部分で **STIRAP** が起きている。

2.3.2 STIRAP の実験条件

STIRAP をするとき **pump** 光と **Stokes** 光の強さを変化させるが、断熱遷移である必要があるために強さの変化はゆっくりやらなければ遷移効率が下がってしまう。また、レーザーの線幅があるため光の強度変化が遅すぎても **dark state** のコヒーレンスが崩れて

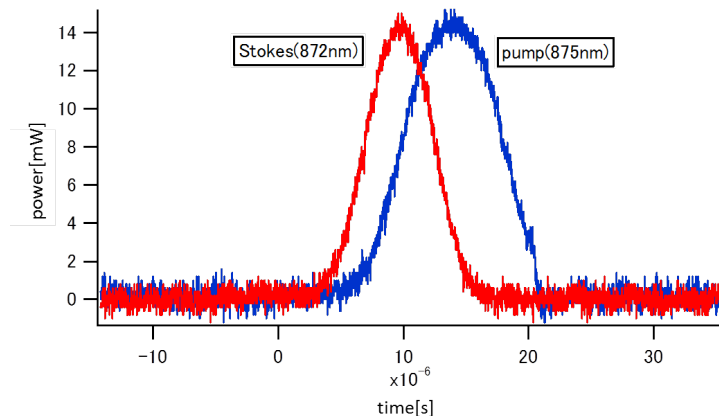


図 2.3.2 実際に使用したパルスの形

しまい遷移効率が下がってしまう。[29]によると、STIRAP の遷移効率は次のように書ける。

$$P = P^{(0)} P^{(\xi)} \quad (2.3.16)$$

$P^{(0)}$ はノイズがないときの効率、 $P^{(\xi)}$ はノイズによる寄与であり、

$$P^{(0)} = \exp\left[-\frac{\gamma\pi^2}{\Omega_0^2\tau} - \frac{\delta^2\gamma\tau}{2\Omega_0^2}\right] \quad (2.3.17)$$

$$P^{(\xi)} = \exp\left[-\frac{1}{2}(D_p + D_s)\tau\right] \quad (2.3.18)$$

とかける。 $\Omega_0 = \sqrt{\Omega_p^2 + \Omega_s^2}$ である。 D_p 、 D_s はそれぞれ pump 光、Stokes 光の線幅であり、強度変調は Stokes 光が式 2.3.19、pump 光が式 2.3.20 のような形をしているとする。

$$f_s(t) = \begin{cases} \cos\left(\frac{\pi}{2}\frac{t}{\tau}\right) & (0 \leq t \leq \tau) \\ 0 & (\text{otherwise}) \end{cases} \quad (2.3.19)$$

$$f_p(t) = \begin{cases} \cos\left(\frac{\pi}{2}\frac{t}{\tau} - \frac{\pi}{2}\right) & (0 \leq t \leq \tau) \\ 0 & (\text{otherwise}) \end{cases} \quad (2.3.20)$$

この P の形から、高い遷移効率を得るためには、大きい Rabi 周波数、線幅の小さい 2 本のレーザーを用意する必要があることがわかる。先行研究 [18] により光強度として 10 mW/mm^2 程度でラビ周波数が $\Omega_0 = 2\pi \times 600 \text{ kHz}$ となることがわかっており、このとき自然幅が $\gamma = 2\pi \times 300 \text{ kHz}$ であり、二つのレーザーの線幅が同じで $\delta = 0$ であるとする、 $P^{(0)} = P^{(\xi)} = 90\%$ となるのは $\tau = 12.4 \mu\text{s}$ 、 $D_p = D_s = 2\pi \times 1.35 \text{ kHz}$ のときである。このように、高効率の STIRAP を行うためには線幅は 1kHz 程度必要となる。

第 3 章

光源の作製

STIRAP を実行し分子準位の探索を行うには、線幅の狭窄化と周波数の掃引のための系が必要となる。この章では、 $\nu = 86$ への STIRAP に向けて我々が作製した波長 872.5 nm 付近の光源について述べる。

3.1 外部共振器型半導体レーザー (ECLD)

外部共振器型半導体レーザー (ECLD; External Cavity Laser Diode) とは、発振のための共振器を外部に持つ半導体レーザーのことであり、出射光の波長が可変であるという特徴がある。我々は Littrow 型と呼ばれる ECLD を作製した。模式図を図 3.1.1 に、実物の写真を図 3.1.2 に示す。この構造では LD と回折格子 (grating) との間の部分が共振器の役割をする。

LD(eagleyard, EYP-RWE-0940-08000-0750-SOT01-0000) から出る光をコリメーションレンズで平行にし、回折格子に入射させる。回折格子の強めあいの条件は、 d : 格子定数 ($d=1/1800$ mm), θ_1 : 入射角, θ_2 : 回折角, m : 次数を表す整数, λ : 波長として

$$d \sin \theta_1 + d \sin \theta_2 = m\lambda \quad (3.1.1)$$

で与えられる。まず、1 次の回折光が LD に戻るように、即ち式 3.1.1 で $m = 1, \theta_1 \cong \theta_2$ より $\sin \theta_1 \cong \lambda/2d$ となるように回折格子の角度を変化させる。戻った 1 次光は LD への正のフィードバックとなり、レーザー発振が起こる。この時 LD と回折格子の間は共振器となり、その間の距離で決まる共振条件を満たす波長の光が出射される。回折格子には圧電素子 (PZT) が付いており、これに電圧をかけることで共振器長を微調できるようになっている。よって、図 3.1.1 の ECLD では回折格子の角度と PZT に印加する電圧の大きさを変えることで、光の波長を変えることができる。0 次光 ($m = 0$) は式 3.1.1 より $\theta_1 = -\theta_2$ となる反射光で、実験にはこの 0 次光を外部に取り出して使用する。

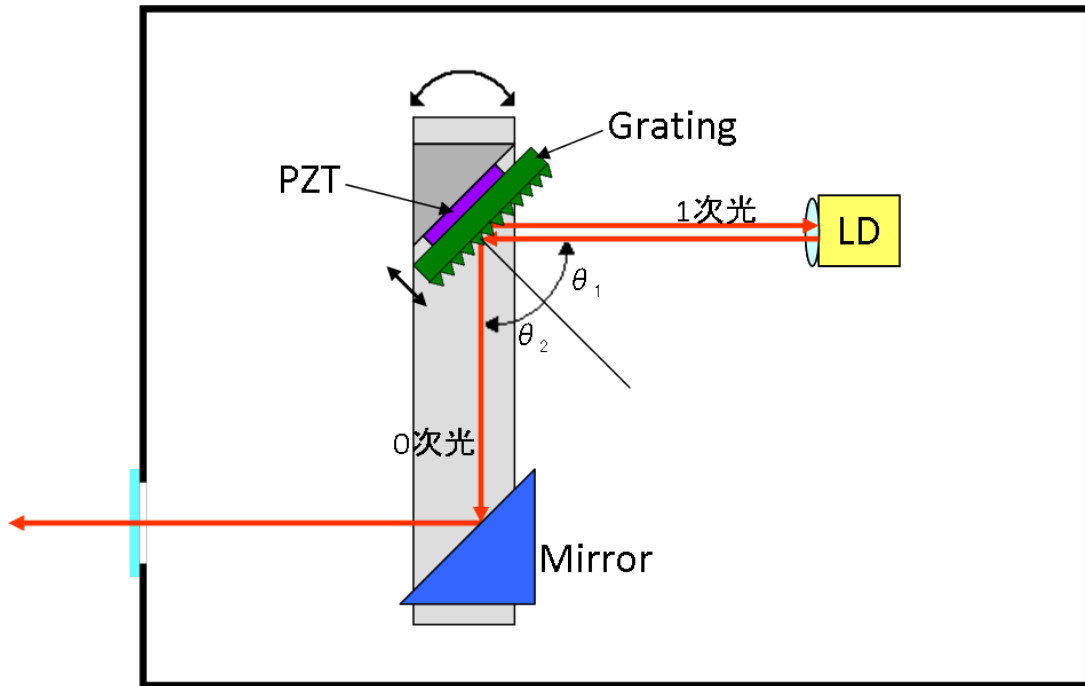


図 3.1.1 Littrow 型 ECLD の構造

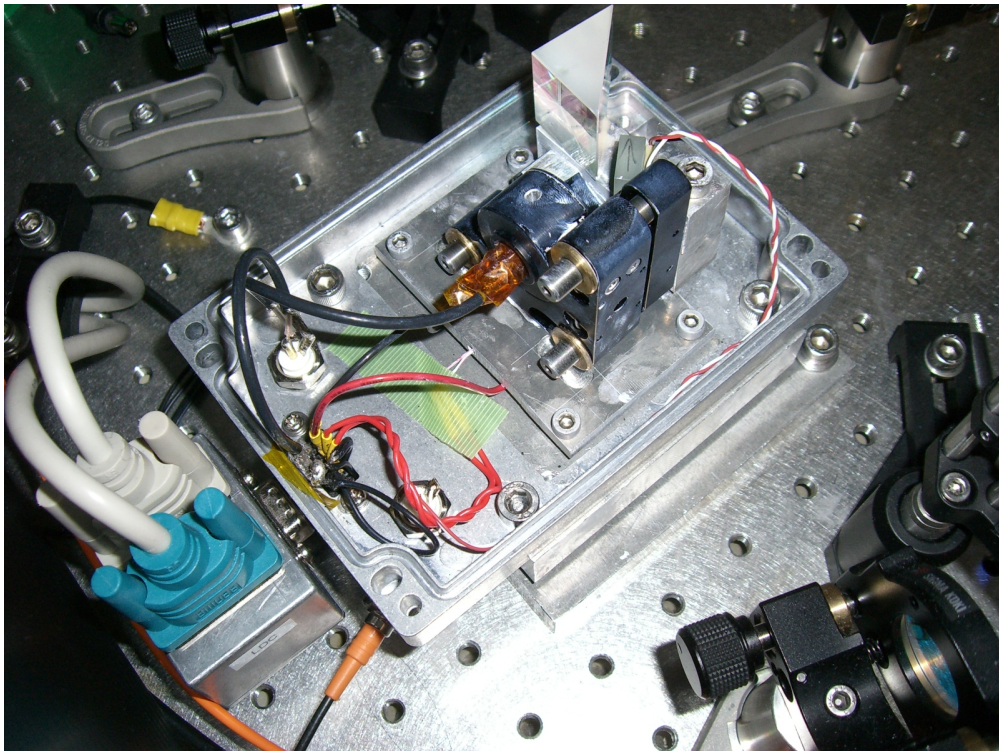


図 3.1.2 作製した ECLD の写真

LD の波長は電流や温度によっても変化する。電流コントローラには THORLABS, LDC202C を用い、図 3.1.3 に示す保護回路 ([18] を参考に作製) を通して LD に定電流を供給した。また、図 3.1.3 の回路の途中及び PZT 素子には次節以降で行うフィードバックのための BNC 端子が取り付けられており、ECLD の周波数を更に安定化できる。温調には THORLABS, TED200C を用い、サーミスタで測った温度をペルチェ素子にフィードバックして LD の温度を一定に保った。

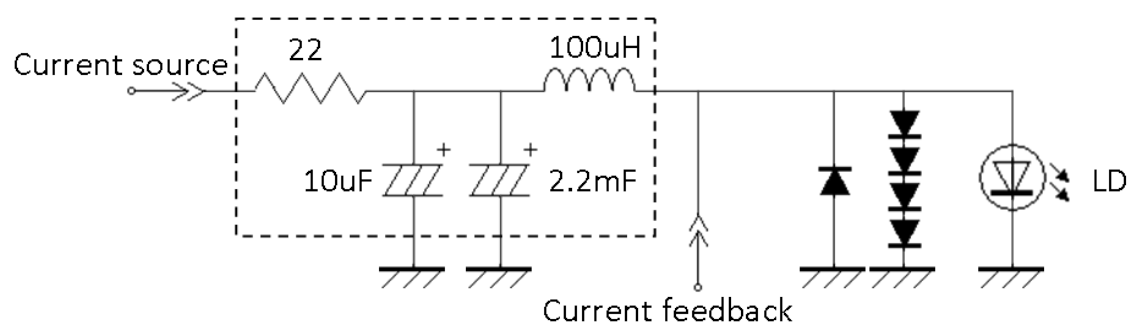


図 3.1.3 LD の保護回路。破線部は ECLD の外側に別途取り付け、それより右側の部分は ECLD の箱内に直接取り付ける。

ECLD の波長を 872.5 nm 近くに合わせた状態で、LD に流す電流値に対する出射光のパワーをプロットしたものが図 3.1.4 である。図のように、発振には電流の閾値が存在し、閾値を超えると電流に対しパワーが線形に上がっていくという振る舞いがみられた。

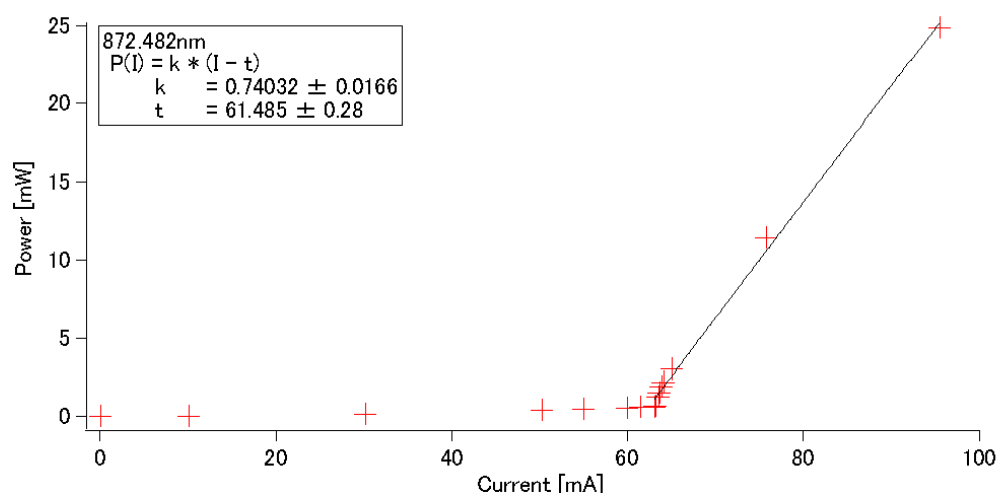


図 3.1.4 ECLD の I-P 特性 (波長 872.5 nm)

図 3.1.5-3.1.11 は発振条件を変えて ECLD の波長を 880 nm から 940 nm まで変化させたときの、電流値に対する光パワーのプロットである。なお、図 3.1.1, 3.1.2 の ECLD では回折格子とミラーはともにミラーマウントに付いており、回折格子の角度を変えても出

射光の方向がほとんど変化しないような構造になっている。プロットを直線でフィッティングして求めた電流の閾値と直線の傾きを表 3.1.1 に示す。また、図 3.1.12 は表 3.1.1 の各値を波長を横軸としてプロットしたものである。図および表から、ECLD の波長によって電流の閾値が異なっていることがわかる。これは LD に使われている半導体素子の特性によるものと考えられる。一方、直線の傾きは波長によらず全て 0.7 W/A 前後の値であるから、閾値より高い電流値では光パワーが同じ割合で上がっていく。我々が使いたい波長 (872.5 nm 付近) では波長 920 nm 程度の場合などと比べると閾値が高くなっているが、LD に流す電流を 110 mA 前後まで上げることで必要な光パワーが得られた。

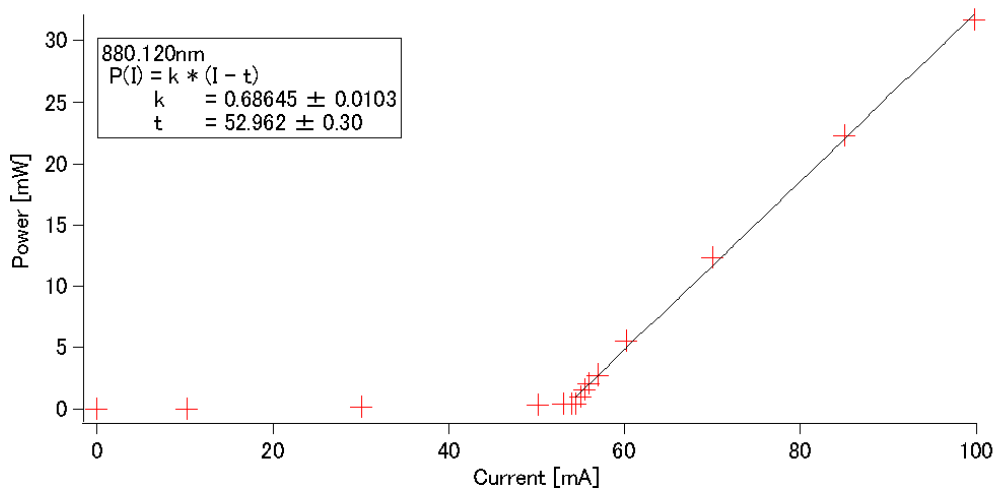


図 3.1.5 ECLD の I-P 特性 (波長 880 nm)

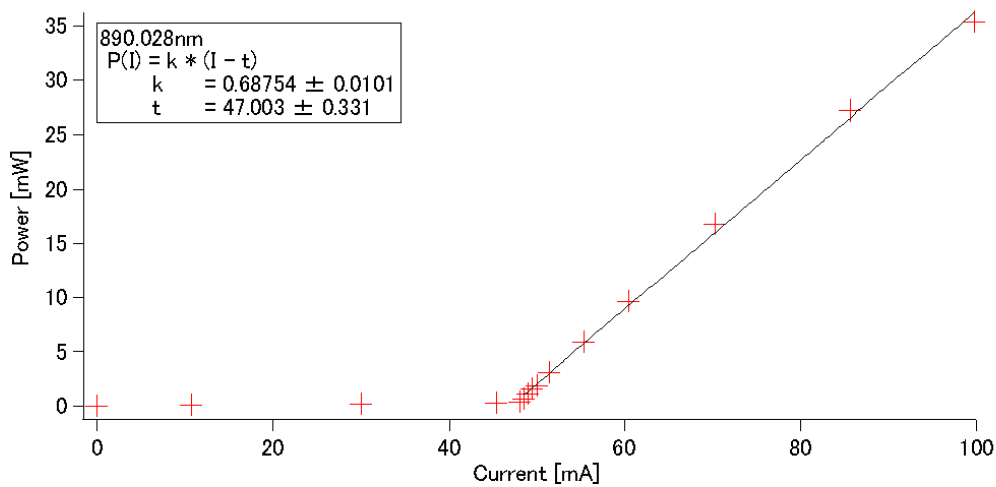


図 3.1.6 ECLD の I-P 特性 (波長 890 nm)

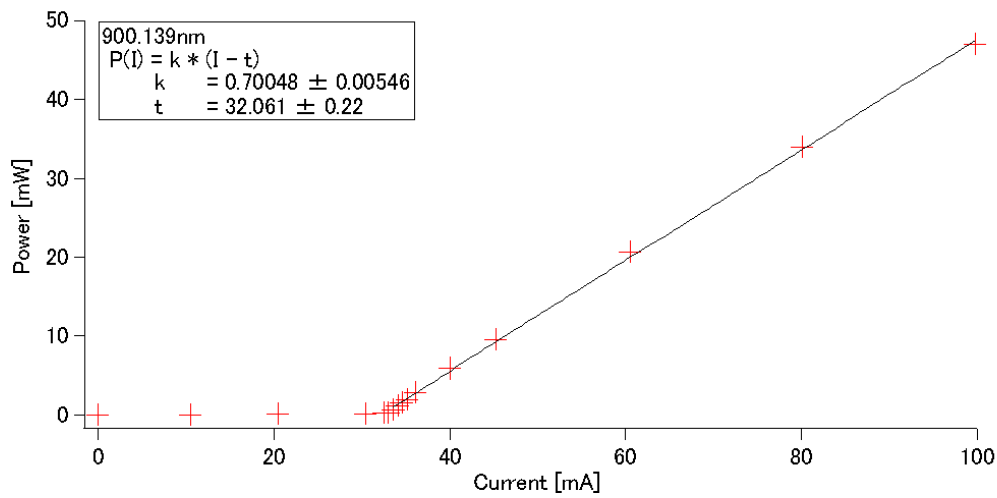


図 3.1.7 ECLD の I-P 特性 (波長 900 nm)

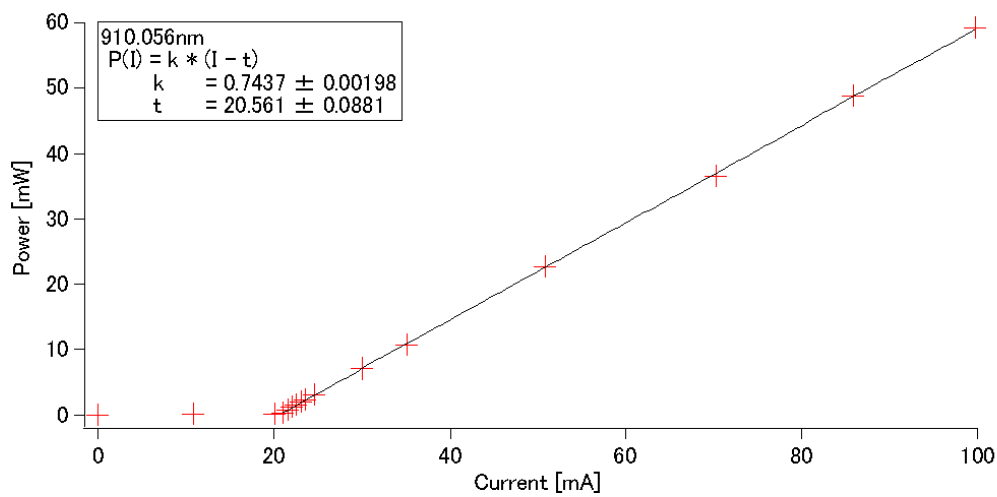


図 3.1.8 ECLD の I-P 特性 (波長 910 nm)

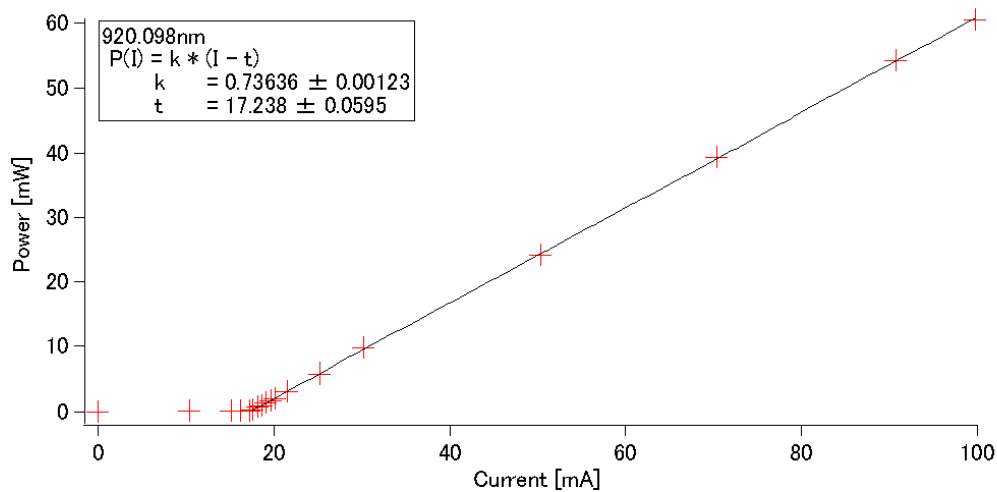


図 3.1.9 ECLD の I-P 特性 (波長 920 nm)

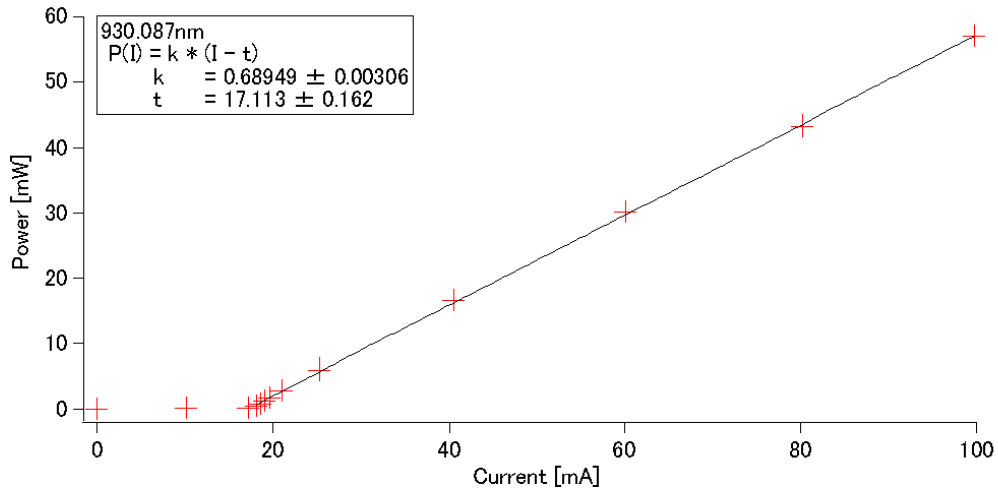


図 3.1.10 ECLD の I-P 特性 (波長 930 nm)

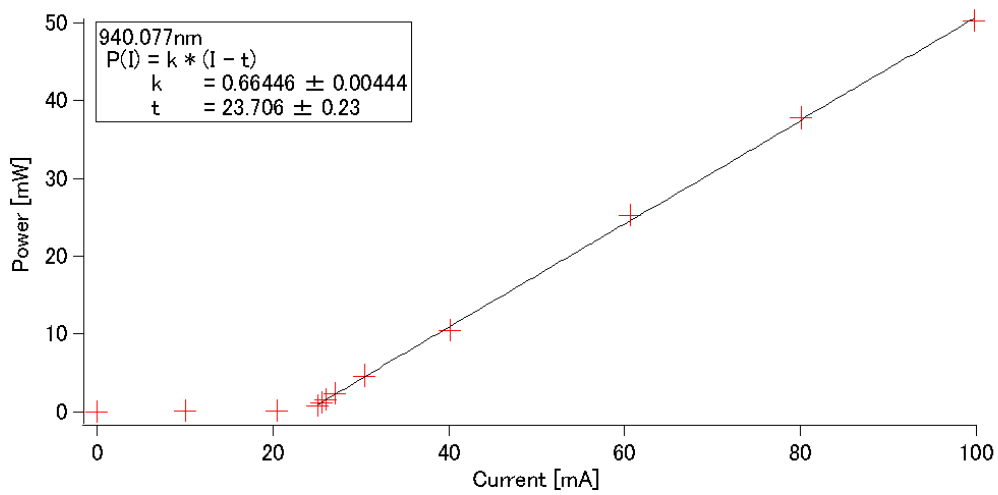


図 3.1.11 ECLD の I-P 特性 (波長 940 nm)

表 3.1.1 ECLD の波長ごとの閾値と傾き

波長 [nm]	電流の閾値 [mA]	直線の傾き [W/A]
872.482	61.49 ± 0.28	0.740 ± 0.017
880.120	52.96 ± 0.30	0.686 ± 0.010
890.028	47.00 ± 0.33	0.689 ± 0.010
900.139	32.06 ± 0.22	0.700 ± 0.005
910.056	20.56 ± 0.09	0.744 ± 0.002
920.098	17.24 ± 0.06	0.736 ± 0.001
930.087	17.11 ± 0.16	0.689 ± 0.003
940.077	23.71 ± 0.23	0.664 ± 0.004

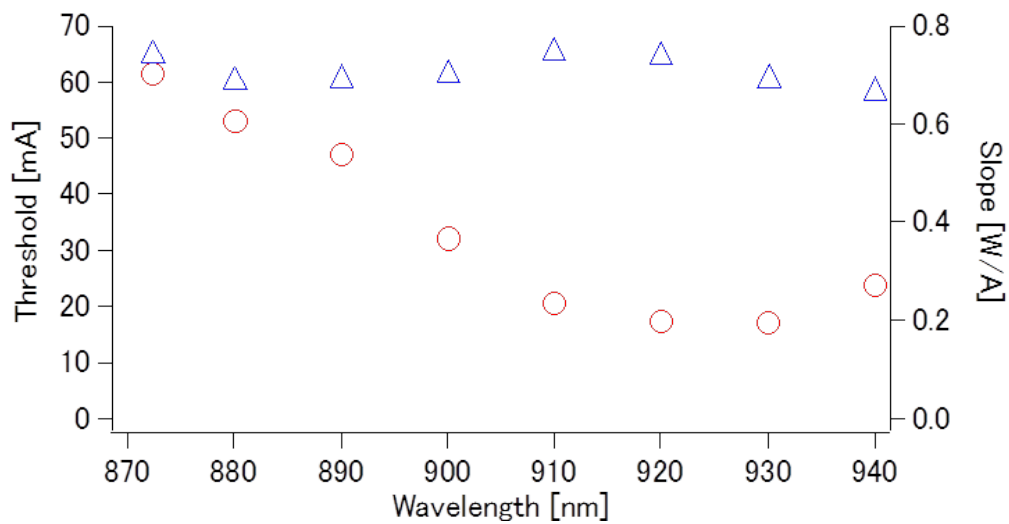


図 3.1.12 ECLD の波長ごとの閾値と傾き (表 3.1.1 の値のプロット)。赤色の丸が電流の閾値、青色の三角が直線の傾きの値である。

図 3.1.13 は ECLD を発振させない状態で、光スペクトラムアナライザを使って見た LD からの自然放射増幅光 (ASE; Amplified Spontaneous Emission) のスペクトルである。ASE とは自然放射光が誘導放出によって増幅されたものである。使用した LD の波長域は 860 - 940 nm であり、この範囲では ASE のパワーが大きくなっているが、スペクトルは平坦にはなっていない。このスペクトルと表 3.1.1 および図 3.1.12 に示した閾値を見比べると、ASE が強い波長ほど電流の閾値が小さく発振しやすいという傾向がみられる。

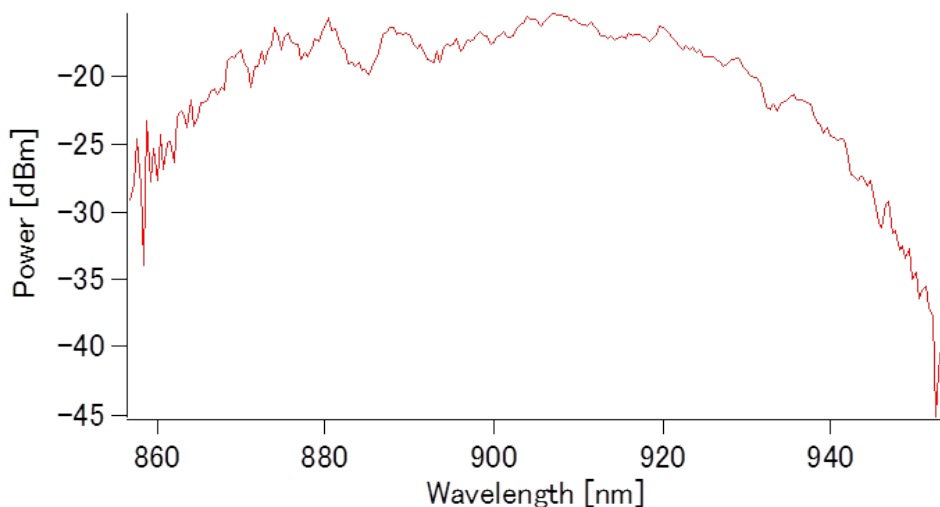


図 3.1.13 LD からの ASE のスペクトル

我々はこの ECLD を 2 台作製して、STIRAP に必要な光源の準備を行った。そのための光学系の概略を図 3.1.14 に示す。準備の手順としては、

- (a) 一方の ECLD を ULE cavity にロックすることで、絶対周波数を安定化する
- (b) 2 台の ECLD のビート信号を使い、(a) の ECLD に対してもう一方の ECLD に周波数オフセットを付ける

という 2 つのステップからなる。以下、(a) でロックする ECLD を “master レーザー”, (b) の方を “slave レーザー” と呼ぶことにする。STIRAP の実験では (b) の周波数オフセットを連続的に変化させることで、Stokes 光の周波数を掃引し、分子準位を探索する。以降の節では (a), (b) それぞれについて説明する。

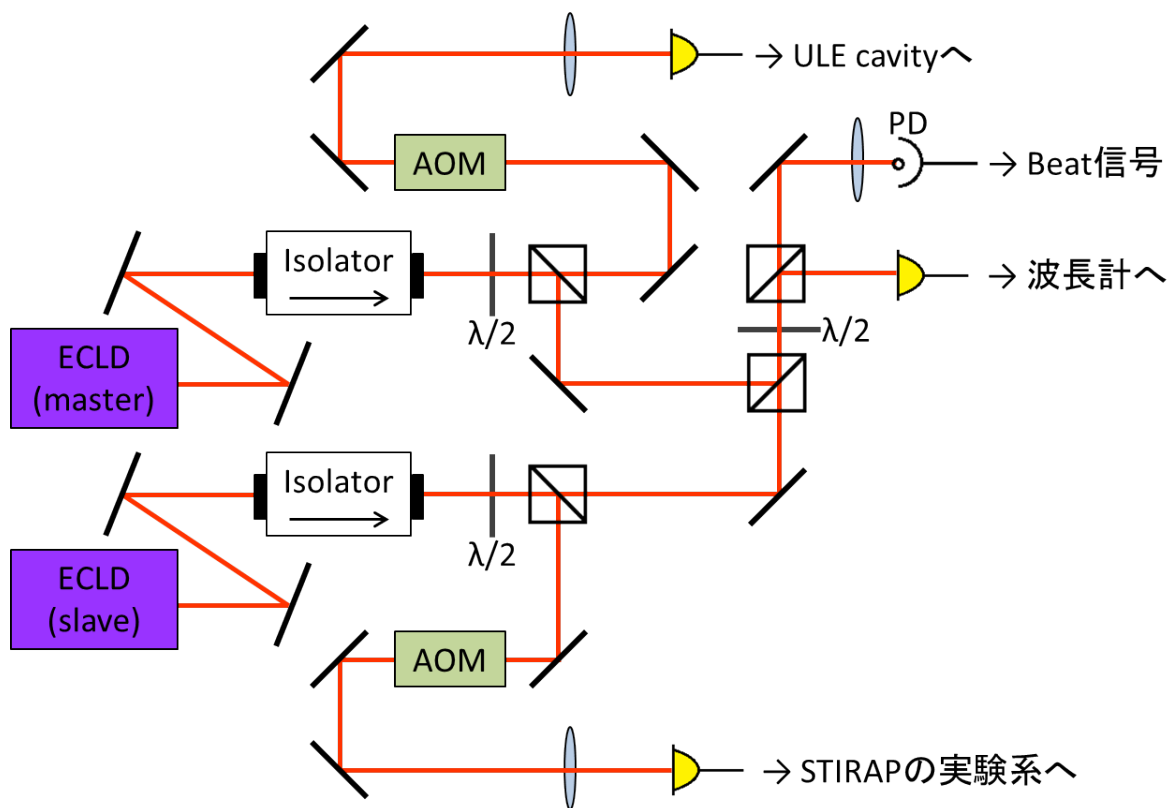


図 3.1.14 光学系の概略図

3.2 cavity lock

この章では master レーザーをどのように特定の周波数に固定するかについて述べる。

master レーザーの周波数ロックは、ULE cavity を用いて行う。ULE cavity は熱膨張係数が非常に小さく温度ゆらぎが小さい cavity である。ULE cavity のセットアップは先行研究 [32] によって済ませられている。図 3.2.1 がレーザーの周波数をロックするためのフィードバック系である。ECDL の素子は図 3.2.2 の cavity lock 回路の Ramp in に入っている 10Hz の三角波によって振られており、ECDL から出る光の周波数が周期的に変化している。master レーザーから出た光は ULE cavity に入り、周波数が ULE cavity の共振条件に合ったときのみ光が通り抜ける。フォトダイオードでは ULE cavity からの反射光をみているから、共振条件のときにだけ光が ULE cavity を透過し、反射光が減少する。光の周波数を周期的に振っているため、反射光の減少はパルス状になっており、PDH 法 [33] を用いてこの信号の微分信号をとり、それをエラー信号として master レーザーにフィードバックをして周波数をロックする。

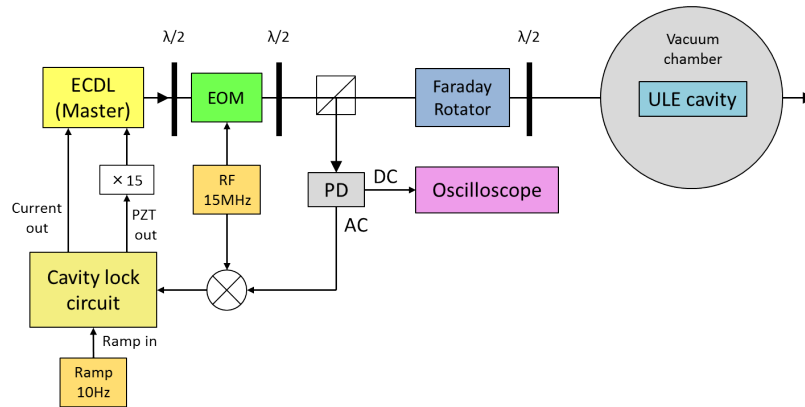


図 3.2.1 ULE cavity に周波数をロックするための系

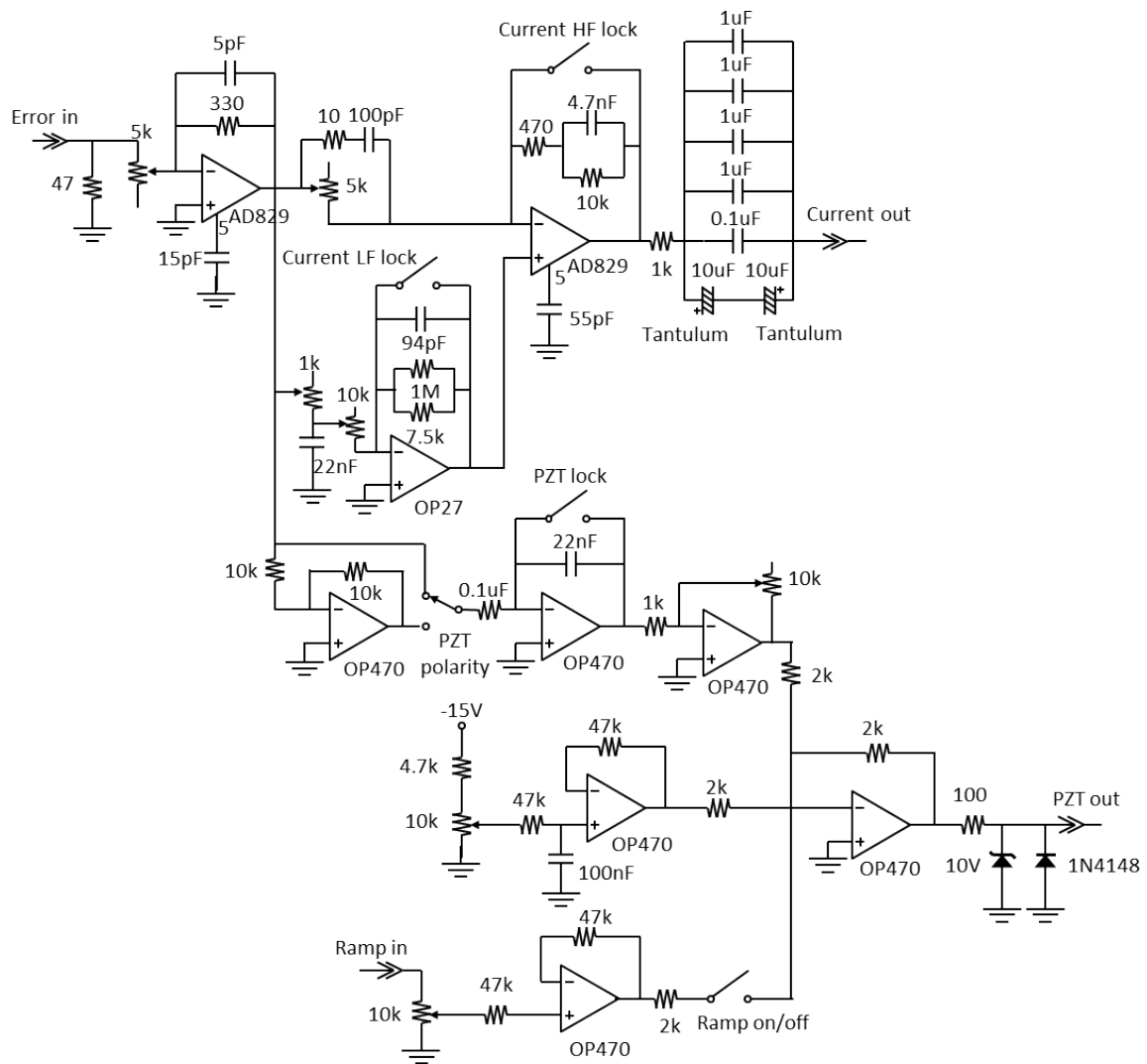
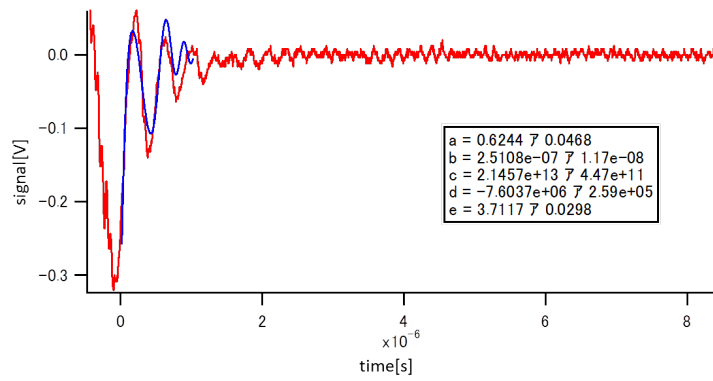


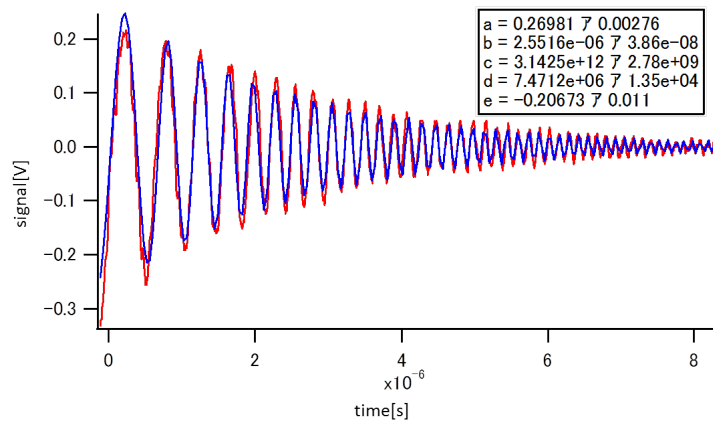
图 3.2.2 cavity lock 回路

3.2.1 レーザーの空間モード

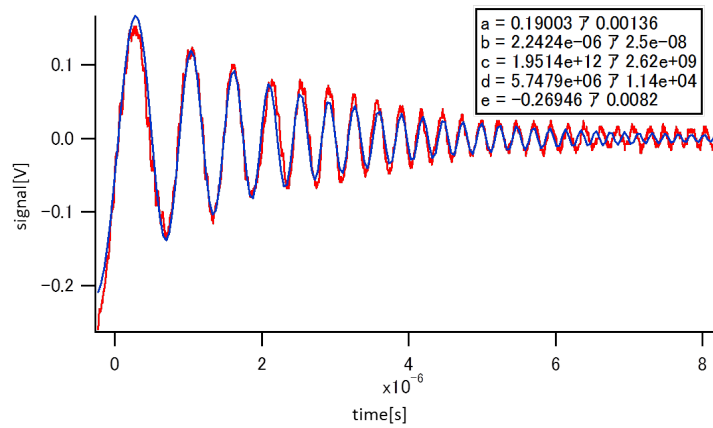
ULE cavity に光を入れて透過光が見えるようにアラインメントをした後、アラインメントを少しいじると空間モードごとの cavity に対する透過光の強度が変化する。レーザーを cavity にロックする時は空間モードのうちどれか一つだけを使うため、使う空間モードの透過光だけが強くなるようにアラインメントを調節する。アラインメントを調節してみても空間モードが強くなりやすいものは TEM00,01,02 の3つだったが、これらのうちどれを使うべきかを見積もるために空間モードごとの cavity の finesse を測定した。finesse とは cavity に入った光が何往復して出ていくかを示す量であり、 $finesse = \frac{FSR}{\text{楯の FWHM}}$ で書かれる。finesse が高いということは、楯の FWHM が小さいということなので、狭線幅の lock を行うには finesse が高い方がよい。finesse を測定するにはパルス的に光を cavity 内に入れて、透過光の減衰をみればよい。cavity は特定の周波数の光しか通さないため、レーザーの周波数をスイープしてやれば cavity にパルス的に光を入れることができる。詳細は [39] による。空間モード TEM00,01,02 の透過光強度をみたものがそれぞれ図 3.2.3, 図 3.2.4, 図 3.2.5 である。fitting は $f(t) = a \exp(-t/b) \sin(ct^2 + dt + e)$ という関数で行っていて b の値から finesse が計算できる ($finesse = \frac{\pi c}{2L} b$)。TEM00,01,02 についてそれぞれ 3 回、6 回、6 回の測定を行い平均値をとると、finesse の値はそれぞれ 1381,10880,11533 となった。この結果より実験には TEM01 か 02 を用いるべきだということがわかった。空間モードの cavity へのカップリング効率が TEM01 の方が高かったため、以降の実験では TEM01 モードを使って ULE cavity にロックしている。



☒ 3.2.3 TEM00



☒ 3.2.4 TEM01



☒ 3.2.5 TEM02

3.2.2 ロックの仕方

PDH法によって得られた微分信号は図3.2.2の **Error in** にエラー信号として入る。それを使って **ULE cavity** からの反射光が減少している周波数にロックをかける。図3.2.6の水色の信号はロックをかけていないときの反射信号であり、信号が増えている部分が反射光が減少している部分である。図の横軸は周波数に比例しているため、この増えている部分に信号が固定されれば周波数をロックできる。まず **cavity lock** 回路の **Current HF lock** をオンにすると **ECLD** に流れる電流にフィードバックがかかり図3.2.7のように反射光の減少部分が広がる。この状態で **Ramp** の振幅を小さくしていきさらに減少部分を広げていき、**Ramp** の振幅をゼロにする。このとき減少部分はオシロスコープの画面上全てに広がり **ECLD** の周波数は **ULE cavity** にロックされている。この状態で **PZT lock** をオンにすることによってこの状態を長時間キープするように周波数をロックすることができる。さらに **Current LF lock** をオンにすることで線幅を狭くすることができる。

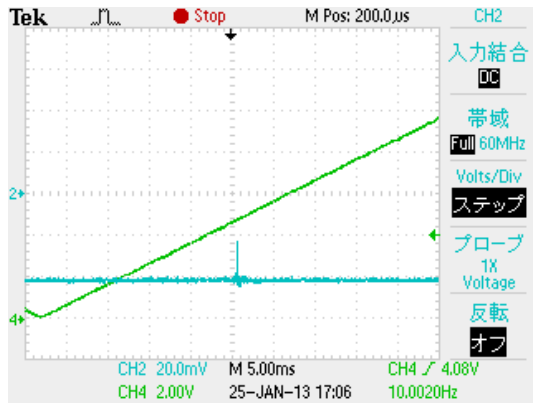


図 3.2.6 ただ周波数を周期的に振っているときの ULE cavity からの反射信号。

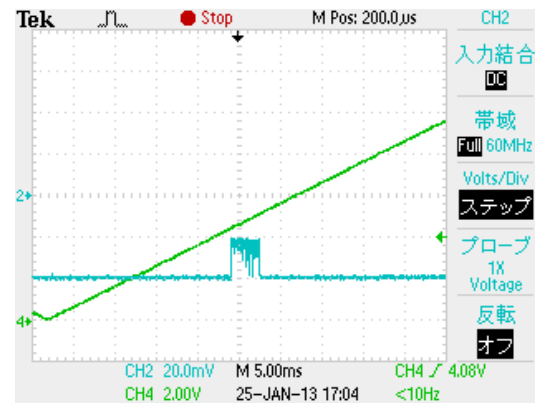


図 3.2.7 HF lock を on にしたとき

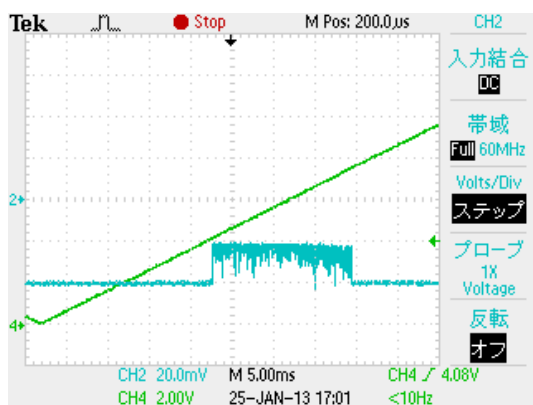


図 3.2.8 HF lock が on の状態で周波数の振幅をせまくしたとき

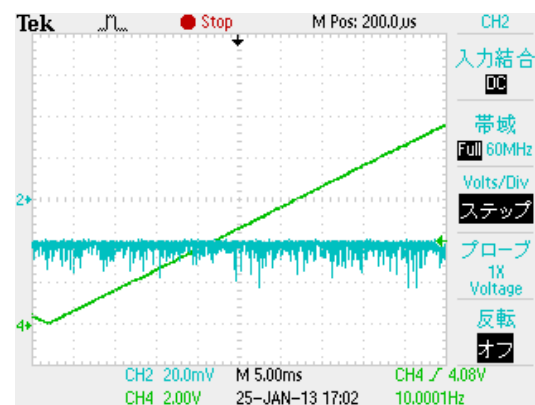


図 3.2.9 HF lock, PZT lock, LF lock を on にしたとき

3.2.3 線幅の評価

上のようにしてロックすると狭い線幅のレーザーが実現できているはずである。ロックしたレーザーの線幅をみるために、先行研究 [32] によるレーザーとのビート信号をみた。このレーザーの線幅は 1kHz よりも小さい。このレーザーとのビート信号の線幅は 2 つのレーザーの線幅の和となっているため、例えばビート信号の線幅が 1kHz 程度になっていれば ULE cavity にロックしたレーザーの線幅はそれ以下になっていることがわかる。図 3.2.10, 3.2.11 は実際に得られたビート信号であり、図 3.2.12 は図 3.2.11 の縦軸をリニアに直したものである。図 3.2.12 のグラフの fitting に用いた関数は

$$f(x) = y_0 + \frac{A}{(x - x_0)^2 + B} \quad (3.2.1)$$

であり、 $\sqrt{B} = HWHM$ となっている。fitting の結果から $131.074 \leq FWHM \leq 144.542$ [Hz] となる。この結果からビート信号の線幅は 140Hz 程度とわかる。この結果から我々が作ったレーザーの瞬間的な線幅はおよそ 100Hz であることが見積もれるが、ビート信号を見ていると中心周波数のゆらぎがあり、それが 1kHz 程度あるため我々の作ったレーザーの線幅としては 1kHz 程度ということになる。

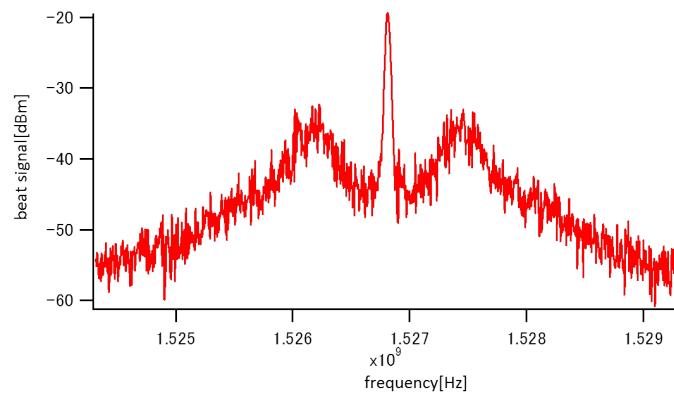
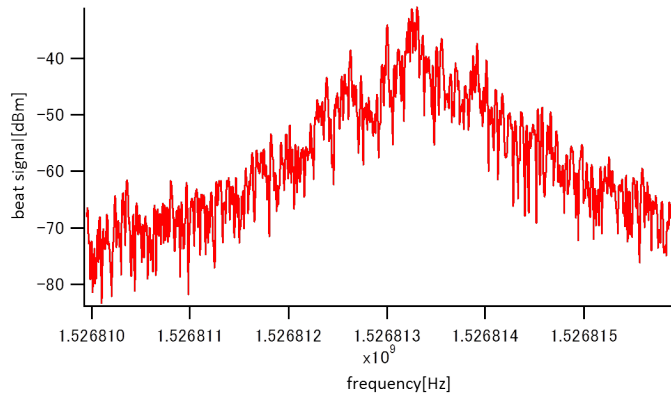
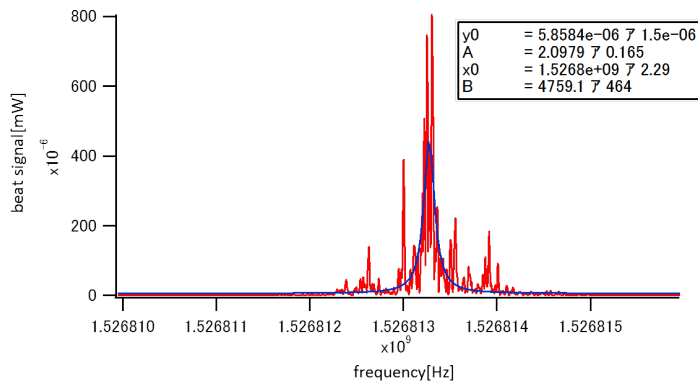


図 3.2.10 Span: 5MHz



☒ 3.2.11 Span: 5kHz



☒ 3.2.12 Span: 5kHz (linear)

3.3 Master レーザーに対する slave レーザーの offset lock

前節で示した方法により master レーザーの絶対周波数を狭線幅で安定化できたが、これだけではレーザー周波数は ULE cavity に共鳴するとびとびの値でしか用意できない。そこで、master レーザーに対して slave レーザーに任意の周波数オフセットをつけ、連続的な周波数を取れるようにする。それには2つの ECLD のビート信号を利用し、図 3.3.1 のような OPLL (Optical Phase Locked Loop) と呼ばれる系を用いる。この系でのロックについて以下で順番に述べる。

まず図 3.1.14 に示したような光学系で master レーザーと slave レーザーのビートをと

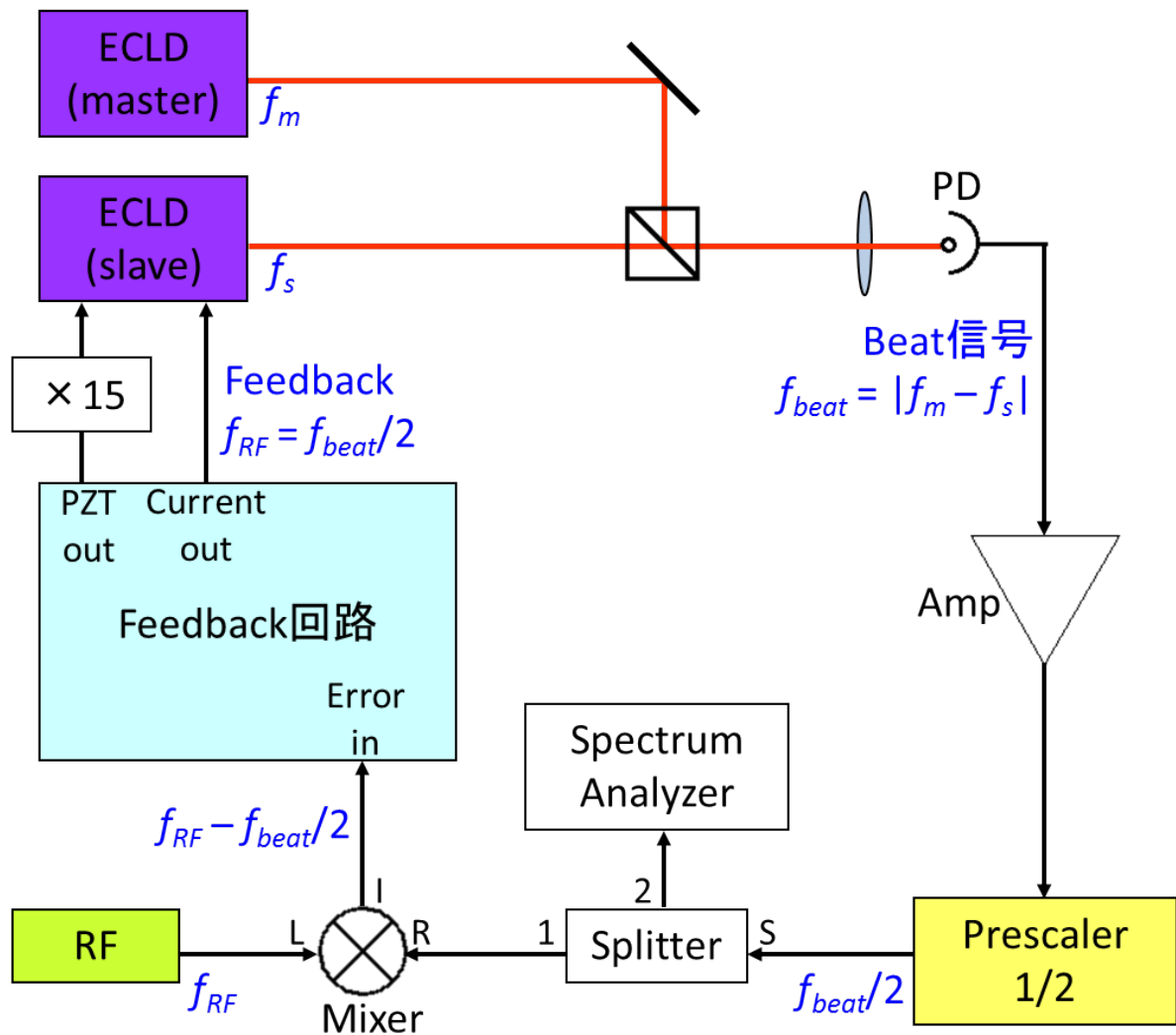


図 3.3.1 offset lock のための系の概略。Feedback 回路は図 3.3.2 に示したものである。

り、フォトダイオード (PD) で電気信号に変換する。PD は HAMAMATSU, G4176 を bias tee 回路 (Mini-Circuits, ZX85-12G+) に取り付けて使用した。Master レーザーの周波数を f_m , slave レーザーの周波数を f_s とすると、PD でのビート信号の周波数はそれらの差 $f_{beat} = |f_m - f_s|$ となる (周波数 $2f_m, 2f_s, f_m + f_s$ の速い振動は平均化されて PD で検出できないと考えられる)。 f_m と f_s のどちらの周波数値が大きいかは、図 3.1.14 にある波長計の読みで確認できる。また、offset lock のための回路 (図 3.3.2) で slave レーザーの PZT にかける bias 電圧を上げると f_s が大きくなるので、この時の f_{beat} の変化からも知ることができる。

PD 直後でのビート信号の強度は -30 dBm 程度とロックには十分でないため、アンプ (R&K, LA120) を接続して信号を増幅した。これにより信号強度は -3 dBm 程度まで増幅され、次に prescaler (RF BAY, FPS-2-12) に入る。今回用いた prescaler は周波数を $1/2$ にするデジタル回路で、ビート信号の周波数は $f_{beat}/2$ に変換される。Prescaler 後の信号は splitter (Mini-Circuits, ZFSC-2-2+) で 2 つに分けられ、一方をスペクトラムアナライザ (Anritsu, MS2683A) でモニターしている。もう一方は mixer (Mini-Circuits, ZFM-150-S+) により、ファンクションジェネレータからの正弦波 (周波数 f_{RF}) と混合される。Prescaler, splitter 後の信号強度は 0 dBm 程度である。

Mixer を通してできる周波数 $f_{RF} - f_{beat}/2$ の信号を、図 3.3.2 に示す回路の Error in に入力し、Current out からの出力を slave レーザーの電流に、PZT out からの出力を 15 倍に増幅してから PZT 素子にフィードバックする。この回路の PZT bias を調節して $f_{beat}/2$ を f_{RF} の近くの値に移動させ、Current lock, PZT lock をオンにすると、 $f_{beat}/2 = f_{RF}$ となるようにロックがかかる (この仕組みについては [32] を参照)。すなわちロックをかけたとき $f_s = f_m \pm 2f_{RF}$ となり、slave レーザーの周波数 f_s には master レーザーの安定化された周波数 f_m に対し $2f_{RF}$ の周波数オフセットがついたことになる。係数 2 は prescaler の $1/2$ から来ており、prescaler を入れたのは周波数オフセットのつけられる範囲を広げるためである。 f_{RF} はファンクションジェネレータで自由に変化させられるから、図 3.3.1 の系により f_s を f_m 周辺の任意の値にロックすることが可能になる。

この系を用いてビート信号をスペクトラムアナライザで見たものが図 3.3.3-図 3.3.5 である。図 3.3.3 は master レーザーを ULE cavity にロックし、slave レーザーはロックされていないときのビート信号を見たものであり、中心周波数は 2 MHz 程度揺らいでいる。これを $f_{RF} = 500$ MHz として上記の方法でロックしたものが図 3.3.4 および図 3.3.5 である。フィードバックによりビート信号の中心周波数が f_{RF} の値に安定化され、その線幅も非常に細くなっている。この線幅は 1 Hz 程度と見積もることができ、master レーザーに対し slave レーザーが 1 Hz の精度で追従していることを表す。故に slave レーザーの線幅は master と同程度の 1 kHz 以下と見積もることができる。また、ロックをした状態で f_{RF} を少しずつ変化させると、それに伴ってロックが保たれたままビートの中心周波数が

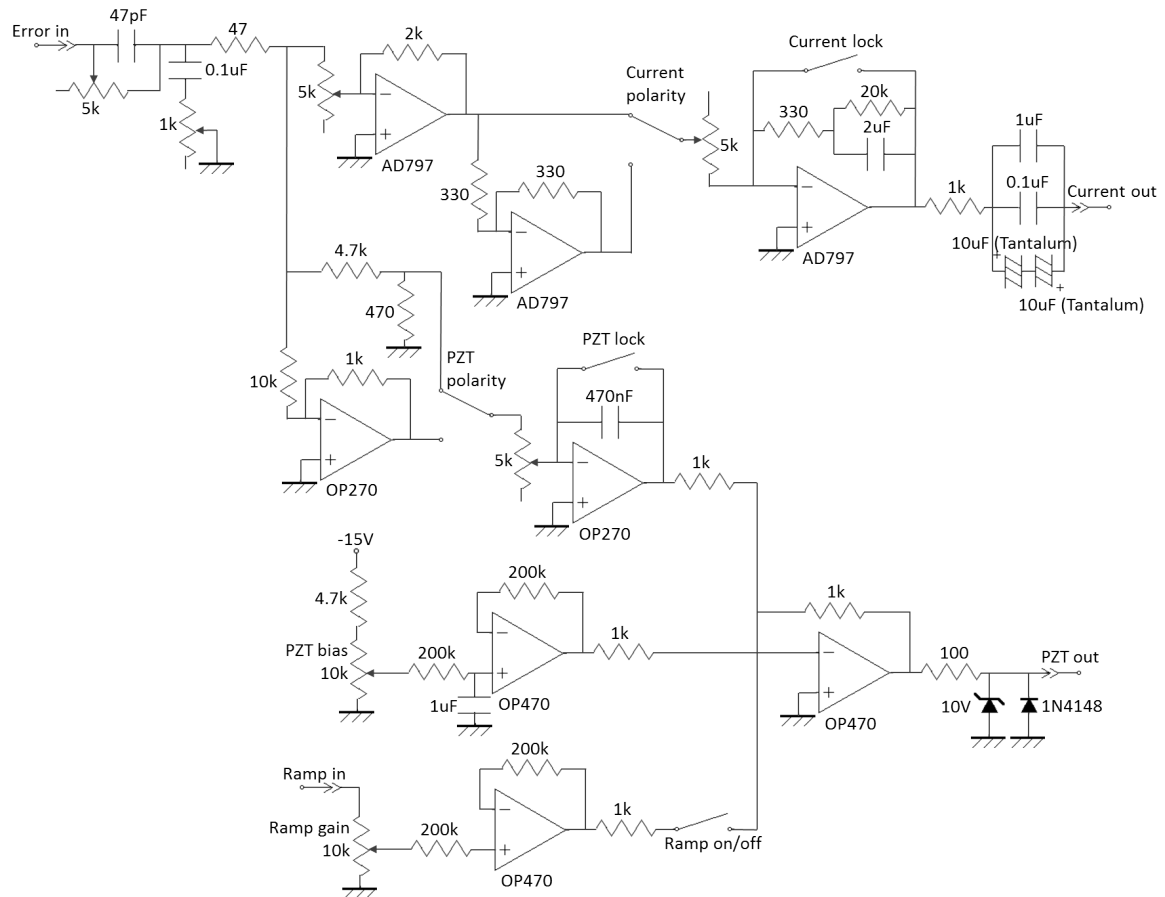


図 3.3.2 offset lock のための回路図。[32] をもとに作製。

ずれていった。このことから slave レーザーのロックが f_{RF} の変化に対して安定であることがわかり、STIRAP の実験においても f_{RF} を連続的に変化させることで f_s を掃引できることが確かめられた。

以上により光源の作製が完了した。34 ページの手順 (a), (b) を実行することで、STIRAP 用レーザー光として線幅 1 kHz 以下で 872.5 nm 付近の任意の周波数をとれる光源を用意できた。

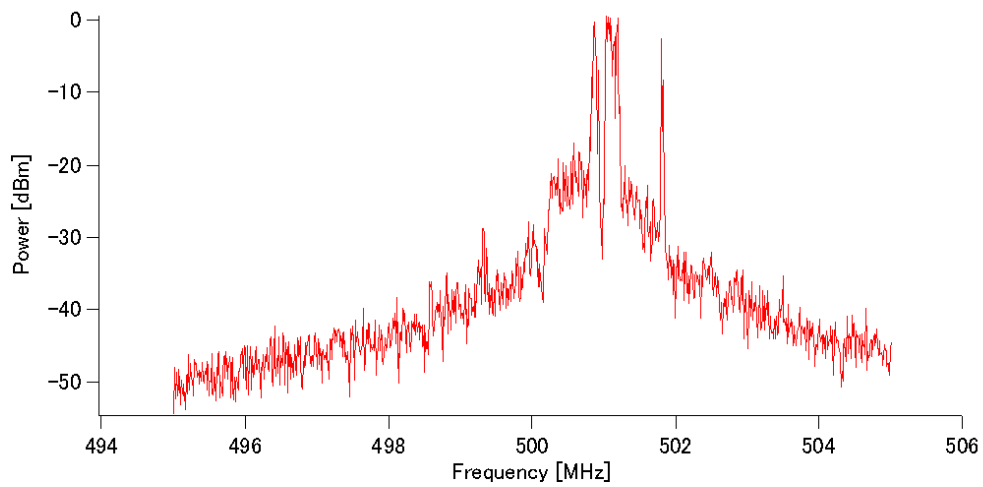


図 3.3.3 ロックされていないビート信号 (SPAN: 10 MHz)

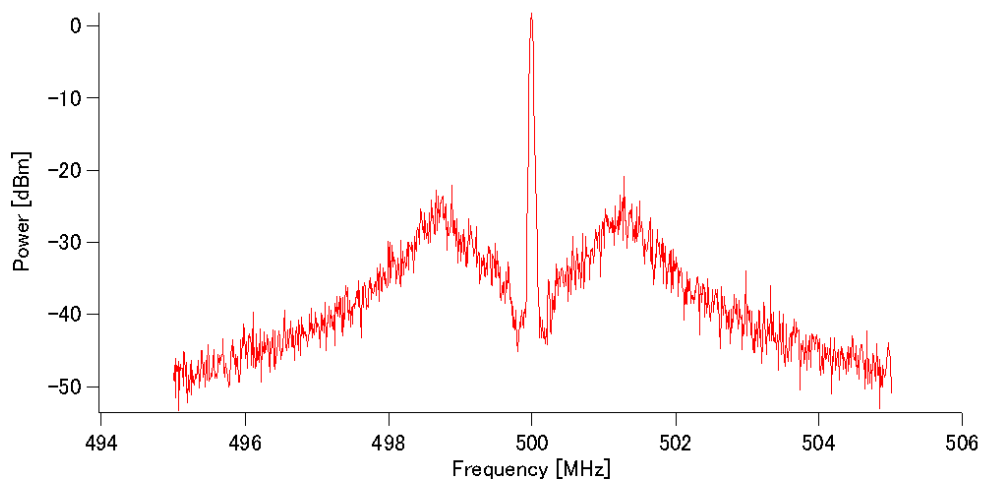


図 3.3.4 ロックされたビート信号 (SPAN: 10 MHz)

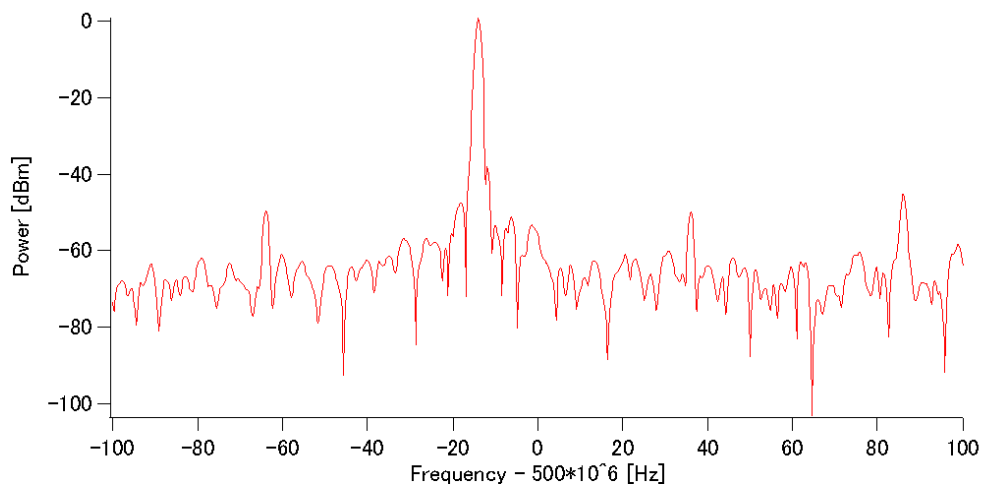


図 3.3.5 ロックされたビート信号 (SPAN: 200 Hz)。中心が 500 MHz より少し離れているのは計測器の誤差による。

第 4 章

STIRAP による分子準位の探索

4.1 実験の準備

4.1.1 音響光学素子 (AOM) による光強度の変調

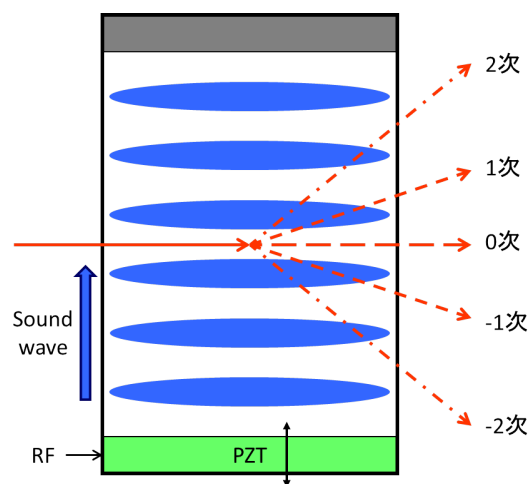


図 4.1.1 AOM の模式図

STIRAP の計算で示されたように、STIRAP は Stokes 光と pump 光の強度を交互に変調することで実現する。我々は音響光学素子 (AOM; Acousto-Optic Modulator) を用いて光強度の変調を行った。AOM とは図 4.1.1 のように、PZT 素子に RF をかけて結晶を振動させ音波を作り、それによる屈折率の周期的な変化によって透過する光を回折させる素子である。図 3.1.14 の光学系では -1 次光 (回折効率 $\sim 80\%$) を取り出して使用している。回折光の強度は AOM の結晶にできる音波の強さに依存し、それは PZT にかける RF の強さで調整できる。そこで我々は図 4.1.2 の系と自作の AOM ドライバ (回路図は図 4.1.3) により、AOM に入れる RF (110 MHz) を制御し光強度を変化させた。この系で

は AOM ドライバから mixer(Mini-Circuits, ZAD-1H+) に入る DC 電圧に応じて、RF の量を変えられるようになっている。電圧値は AOM ドライバの amplitude 可変抵抗、あるいは Amp. in に外部から信号を入力することで調節できる。PD in からのフィードバック制御も可能であるが、今回は使用しなかった。回路図中の MAX319(Maxim Integrated) は、TTL 信号の on/off によって RF を on/off するためのものである。更に、TTL が off のときの RF の漏れを抑えるため、先行研究 [25] [32] に倣って mixer の前に RF スイッチ (Mini-Circuits, ZYSWA-2-50DR) を入れた。

なお、AOM による回折は微視的には光子とフォノンの相互作用としても考えられ、二者のエネルギー・運動量保存にもとづき回折光は周波数が増える。例えば我々の系は音波が 110 MHz で -1 次光の場合であり、回折光はもとの光より 110 MHz だけ周波数が小さくなる。

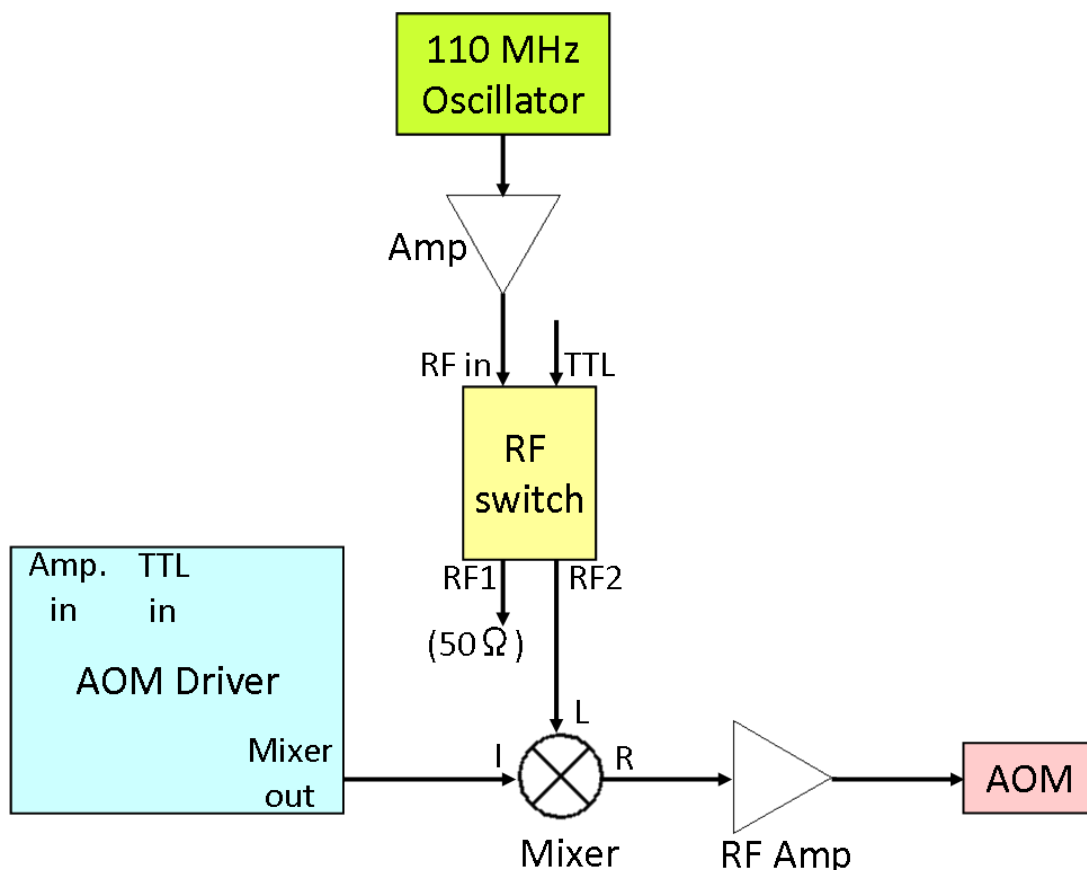


図 4.1.2 AOM に入れる RF を制御するための系。図は slave レーザー側の AOM に対するもので、master 側は RF スイッチを入れておらず強度変調も行わない。

以上の準備を基に、ファンクションジェネレータで成形したガウシアン型のパルス列を Amp. in に入力し、前章で作製した 872.5 nm の光源の強度変調を行った。 $v = 91$ か

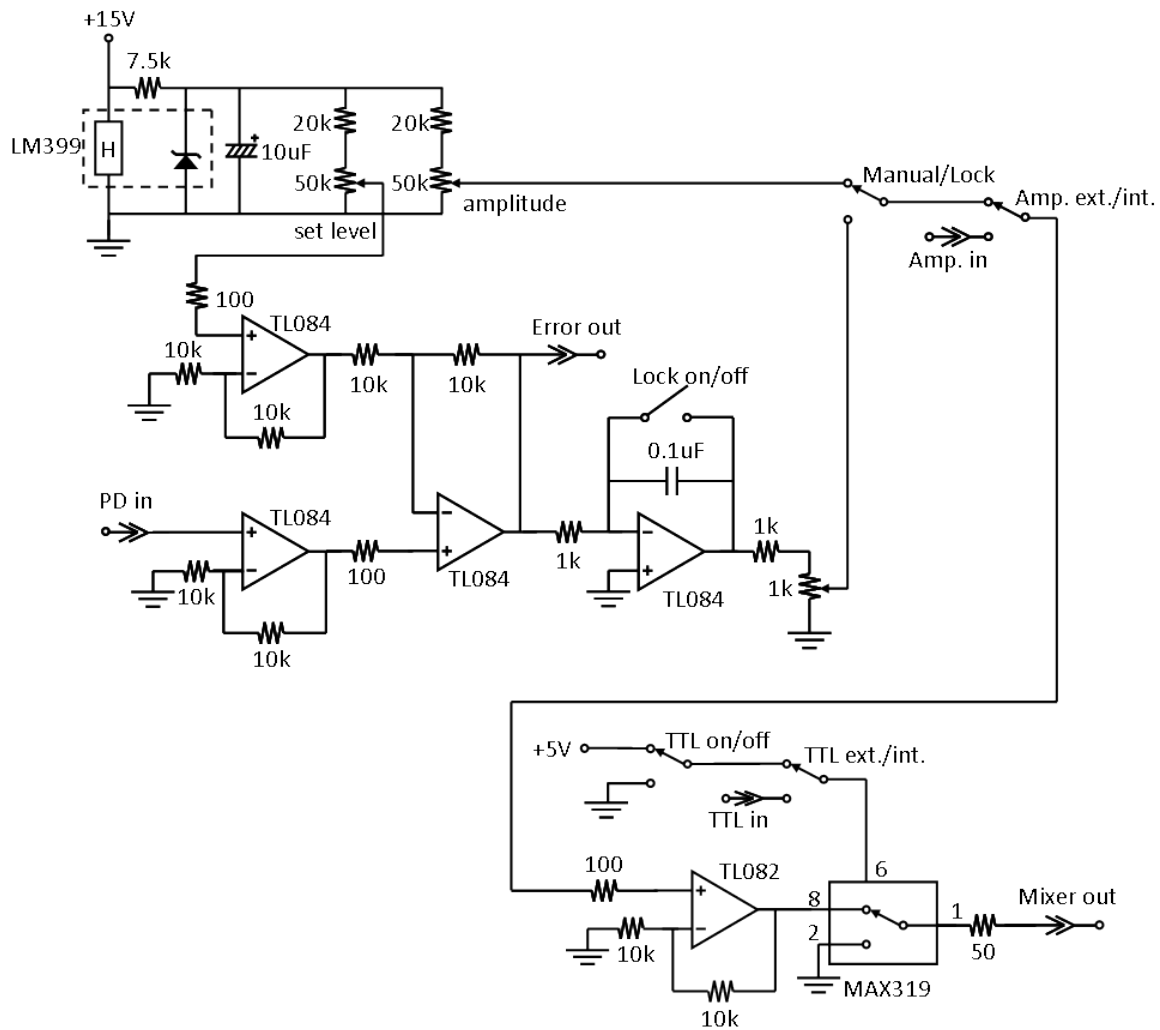


図 4.1.3 AOM ドライバの回路図。[32] を基に作製。

ら $\nu = 86$ への STIRAP において実際に分子へ当てる光の波形を、フォトダイオードからの電圧信号として見たものが図 4.1.4 である。図には同様の方法で変調された 875 nm の pump 光も重ねて示している。このようにして、Stokes 光と pump 光の強度を交互に入れ替えた光を用意できた。

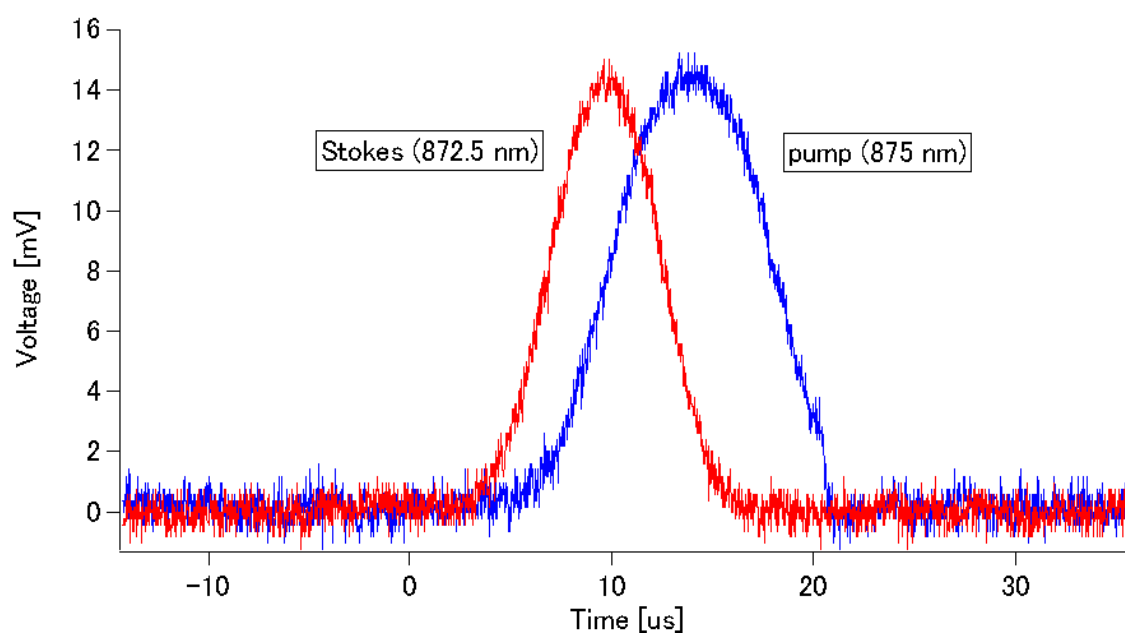


図 4.1.4 AOM により強度変調された光。赤: 872.5 nm の Stokes 光、青: 875 nm の pump 光

4.1.2 実験のタイムライン

ここまでの準備によって、我々は **STIRAP** に使用できる光源を用意することができた。この光を分子の生成、分光を行っているテーブルへ光ファイバーでもっていきここで **STIRAP** を行う。実験のタイムラインは図 4.1.5 のようになっている。真空チャンバー中において磁気光学トラップ (Magneto-Optical Trap, MOT) で原子を集め、**compressed MOT (CMOT)** でそれを圧縮し密度を高める。MOT とはある点を中心としそこから離れるに従って強くなるような磁場中で、原子の共鳴から離調のついたレーザーを異なる 3 軸上で 6 方向から当てると 3 次元的に原子を中心にトラップしつつ、さらにドップラー冷却によって原子を冷却することができるという手法である [1]。CMOT では MOT の状態からさらに磁場勾配、レーザーの離調、レーザーの強度を調整することによってさらに密度を上げることができる [38]。CMOT によって原子の密度は 10^9 cm^{-3} から 10^{11} cm^{-3} オーダーへ圧縮される。このようにして密度が高まった原子は光会合 (Photoassociation, PA) によって分子となる。PA の概略図は図 4.1.7 のようになっており、K 原子 Rb 原子を KRb 分子の励起状態へ励起しそこから自然放出によって分子の準位へ落ちることを利用した会合方法である。ここまでの過程で $130 \mu\text{K}$ の極低温分子が作られる。作られた分子を **STIRAP** によって別の振動準位へ遷移させ、イオン化によって **STIRAP** が成功したかどうかを観測する。この行程の詳細は [18][25] を参照されたい。全体の概略は図 4.1.6 のようになっている。図 4.1.5 の **Blank** は何も行わない所であり、MOT の磁場が切れるのを待っている。**Blank** の長さが短いと MOT の磁場が残ってしまう。後の実験ではこの **blank** の長さを $200 \mu\text{s}$, $400 \mu\text{s}$, $1000 \mu\text{s}$ のどれかでやっているが、最初は $200 \mu\text{s}$ である。

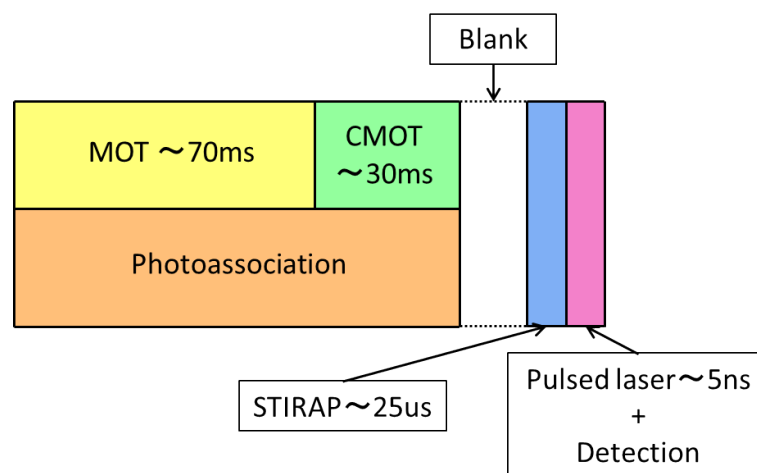


図 4.1.5 実験のタイムライン

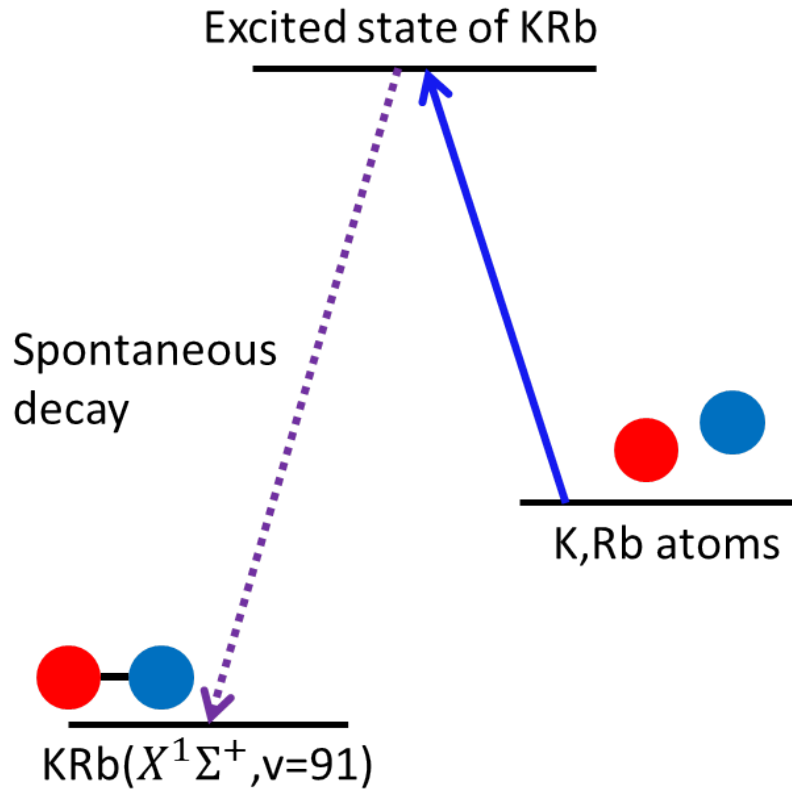


図 4.1.6 光会合 (PA) の概略図

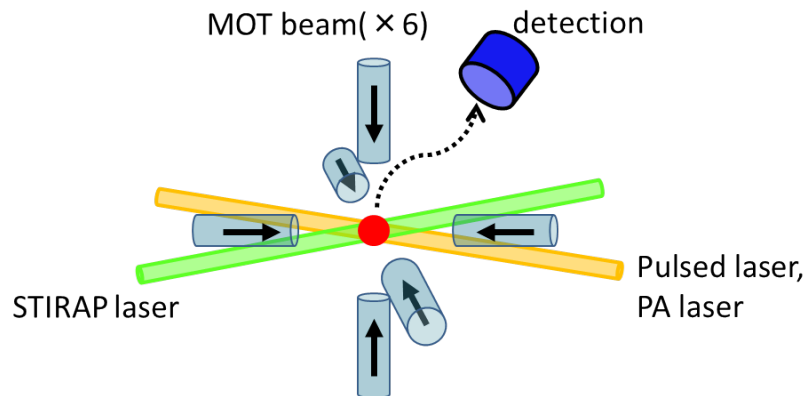


図 4.1.7 実験の概略図

4.1.3 周波数の予測

分子の準位を探索するにあたって、光の周波数を何十 GHz もスイープできるわけではないので、あらかじめ見つけたい準位と励起状態の間のエネルギー差をある程度見積もっておく必要がある。まず LEVEL[30] によって hyperfine によって分裂する前の準位を計算した。計算するときを使用したポテンシャルは、基底状態の $X^1\Sigma^+$, $a^3\Sigma^+$ は [26] の値、励起状態の $(3)^1\Sigma^+$ は [27] の値をそれぞれ用いて計算した。LEVEL による計算結果をまとめた図が図 4.1.8 である。実験で見つけたい準位は $J=0$ のものであるが、 $J=2$ が見える可能性もあるため $J=2$ の準位の値も書いてある。

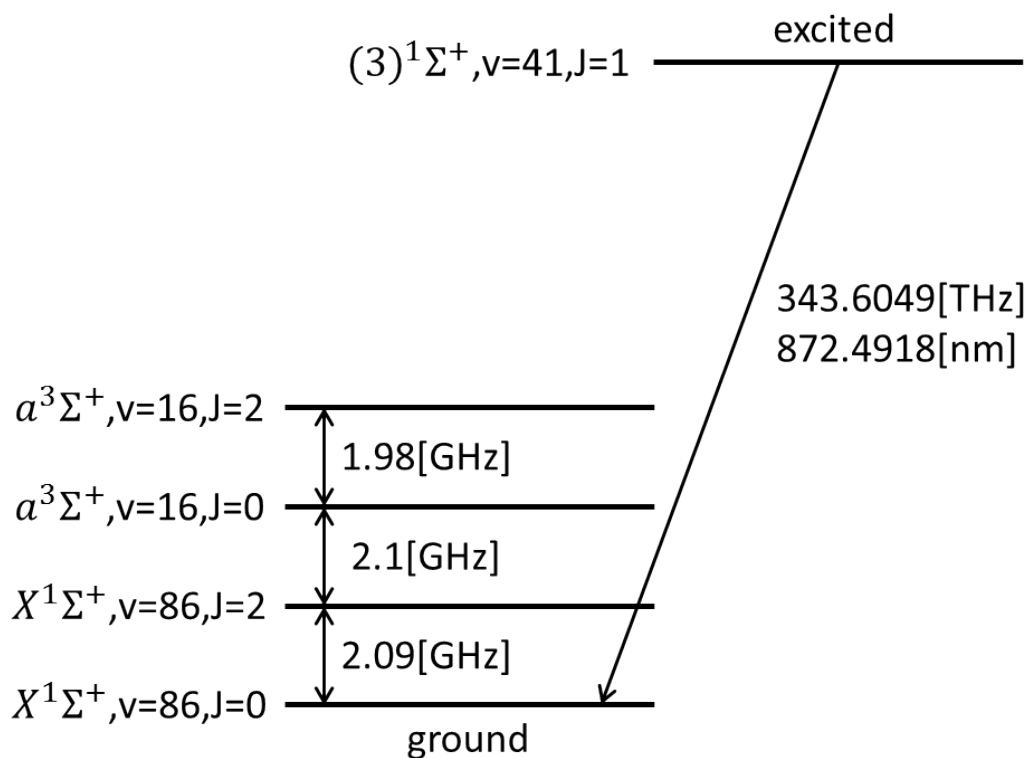


図 4.1.8 LEVEL による準位間の周波数

LEVEL によって見つけたい準位のだいたいの値がわかった。ここからさらに hyperfine による分裂を mathematica を使って計算する。2.2 節のようにしてこの系のハミルトニアンの固有値を、 $E_{86} - E_{16} = -4182 \text{ MHz}$, $F_{86-16} = 0.137928$ として求めたものが表 4.1.1 のエネルギーの値である。これは hyperfine でわかれる前の $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の準位を 0 としたときのエネルギーとなっており、それぞれの状態は Singlet と Triplet が混ざった状態になっている。その混ざり具合を表しているのが、triplet component, singlet component である。2.2 節の mixing が triplet component の値であり、1-(triplet component) が singlet component の値である。上の 10 個が $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ が、一番下の 4 つが $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ がそれぞれ hyperfine により分裂したものと予想される。実験は励起状態として singlet を使うのでまずは singlet component が大きい 4 つを探した。

表 4.1.1 準位のエネルギーの予想

エネルギー(MHz)	triplet component	singlet component	一つ下とのエネルギー差[MHz]	frequency offset[MHz]	光の周波数 [MHz]
2658.26025	1.0000000	0.0000000	100.17	-2732.59	343597294.82
2558.092403	0.9999913	0.0000087	76.37	-2682.50	343597394.99
2481.719081	0.9999920	0.0000080	51.52	-2644.32	343597471.36
2430.195299	0.9999965	0.0000035	4040.47	-2618.56	343597522.89
-1610.279124	0.9813011	0.0186989	42.27	-598.32	343601563.36
-1652.544542	0.9797101	0.0202899	31.35	-577.19	343601605.63
-1683.899192	0.9784669	0.0215331	16.78	-561.51	343601636.98
-1700.683452	0.9777773	0.0222227	2519.65	-553.12	343601653.77
-4220.336164	0.9990323	0.0009677	85.68	706.71	343604173.42
-4306.011198	0.9978879	0.0021121	601.89	749.55	343604259.09
-4907.901592	0.0187076	0.9812924	5.78	1050.49	343604860.98
-4913.685404	0.0224099	0.9775901	2.80	1053.38	343604866.77
-4916.482006	0.0225043	0.9774957	1.18	1054.78	343604869.56
-4917.665111	0.0222227	0.9777773		1055.37	343604870.75

4.1.4 hyperfine level 間の遷移強度

実験で使用する励起状態の準位 $(3)^1\Sigma^+(v = 41, J = 1)$ も hyperfine structure をもっていて、励起状態において分子がどの準位にあるかによって $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ のどの準位にいきやすいかが決まる。励起状態と基底状態間の遷移強度を計算するために、まずは励起状態の hyperfine structure がどうなっているかを計算する。2.2 節と同様にして、ハミルトニアンを行列表示し、そのエネルギー固有値と固有ベクトルを求める。ハミルトニアンの行列要素は先行研究 [18] に書いてあり、

$$\begin{aligned}
& \langle I_1, I_2, J, F_1, F | \mathcal{H}_{eQq} | I_1, I_2, J', F'_1, F' \rangle \\
&= \delta_{FF'} \delta_{F_1 F'_1} \frac{(eQq)_1}{4} (-1)^{J'+J+F_1+I_1} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)} \\
&\times \begin{Bmatrix} I_1 & J' & F_1 \\ J & I_1 & 2 \end{Bmatrix} \begin{pmatrix} J & 2 & J' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_1 & 2 & I_1 \\ -I_1 & 0 & I_1 \end{pmatrix}^{-1} \\
&+ \delta_{FF'} \frac{(eQq)_2}{4} (-1)^{F+I_1+I_2+1} \sqrt{(2J+1)(2J'+1)(2F_1+1)(2F'_1+1)} \\
&\times \begin{Bmatrix} I_2 & F'_1 & F \\ J & I_2 & 2 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} F_1 & J & I_1 \\ J' & F'_1 & 2 \end{Bmatrix} \begin{pmatrix} J & 2 & J' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I_2 & 2 & I_2 \\ -I_2 & 0 & I_2 \end{pmatrix}^{-1} \quad (4.1.1)
\end{aligned}$$

となっている。これを用いて励起状態を行列表示して、固有値、固有ベクトルを求めると 10 個の固有値が求まる。これによって励起状態の hyperfine structure がわかる。今、励起状態においては $F_{\text{Rb}} = J + I_{\text{Rb}}$ が良い量子数となっていて、固有状態は $|F_{\text{Rb}}, I_{\text{K}}, F \rangle$ の重ね合わせとて書かれる。しかし基底状態は $I = I_{\text{K}} + I_{\text{Rb}}$ が良い量子数になっていて固有状態は $|J, I, F \rangle$ の重ね合わせとして書かれる。そのためまずは励起状態の基底を $|F_{\text{Rb}}, I_{\text{K}}, F \rangle$ から $|J, I, F \rangle$ へ書き直す。書き直すときの各基底の係数をまとめたものが表 4.1.2 である。例えば、

$$|F_{\text{Rb}} = 5/2, I_{\text{K}} = 3/2, F = 3 \rangle = \sqrt{0.06} * |J = 1, I = 3, F = 3 \rangle + \sqrt{0.94} * |J = 1, I = 2, F = 3 \rangle$$

となる。励起状態を $|J, I, F \rangle$ で書くことができたので、基底状態の $|J_1, I_1, F_1, m_1 \rangle$ と励起状態の $|J_2, I_2, F_2, m_2 \rangle$ の間の遷移モーメントを計算すればよい。今、 $J_1 = 0, J_2 = 1$ であり $I_1 = I_2 = I$ のときのみ遷移が起こる。[34] より遷移モーメントは、

$$\begin{aligned}
\langle F_1 m_1 | er_q | F_2 m_2 \rangle &= \langle F_1 || er || F_2 \rangle (-1)^{F_2-1+m_1} \sqrt{2F_1+1} \begin{pmatrix} F_2 & 1 & F_1 \\ m_2 & q & -m_1 \end{pmatrix} \quad (4.1.2) \\
(\langle F_1 || er || F_2 \rangle &= \langle J_1 I_1 F_1 || er || J_2 I_2 F_2 \rangle \\
&= \langle J_1 || er || J_2 \rangle (-1)^{F_2+J_1+1+I} \sqrt{(2F_2+1)(2J_1+1)} \begin{Bmatrix} J_1 & J_2 & F_1 \\ F_2 & F_1 & I \end{Bmatrix})
\end{aligned}$$

と書いて、これを計算する。 $\langle J_1 || er || J_2 \rangle$ は共通なので例えば、 $|J_2 = 1, I_2 = 2, F_2 = 3 \rangle$, $|J_1 = 0, I_1 = 2, F_1 = 2 \rangle$ の間の遷移モーメントの比は図 4.1.9 のようになっている。こ

の値と表 4.1.2 の値からどの hyperfine level 間の遷移が起きやすいかを見積もることができる。

表 4.1.2 励起状態の基底を書き換えるときの展開係数の 2 乗

F_Rb	F	$I=I_{Rb}+I_K$			
		3	2	1	0
5/2	4	1	0	0	0
	3	0.06	0.94	0	0
	2	0.0004	0.71	0.29	0
	1	0	0.06	0.73	0.21
3/2	3	0.94	0.06	0	0
	2	0.24	0.23	0.53	0
	1	0	0.51	0.03	0.47
	0	0	0	1	0
1/2	2	0.76	0.06	0.18	0
	1	0	0.44	0.24	0.32

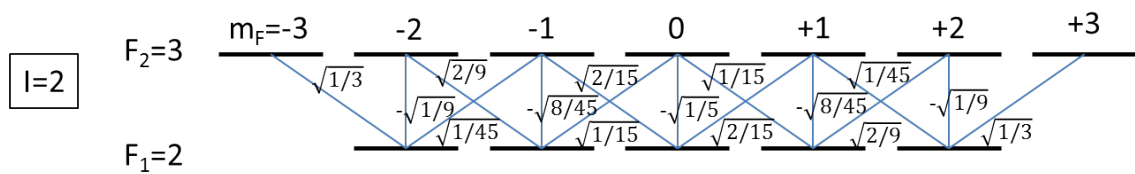


図 4.1.9 $|J_2 = 1, I_2 = 2, F_2 = 3\rangle$ と $|J_1 = 0, I_1 = 2, F_1 = 2\rangle$ の間の遷移モーメントの比

4.2 STIRAP による分光

計算によって $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ と $a^3\Sigma^+(v=16, J=0)$ の間の周波数がわかったのでそのあたりで周波数をスイープして準位をさがしていく。

4.2.1 2 段の STIRAP による分光

まず行ったのは STIRAP を連続して 2 回行う方法である。初めに Photoassociation によって $X^1\Sigma^+(v=91, J=0)$ の準位の分子を作る。そして 1 度目の STIRAP によって分子を $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ へ移し、2 度目の STIRAP によって $X^1\Sigma^+(v=0, J=0)$ へ移す。このようにして振動回転基底状態へと移された分子をイオン化してその数を検出するという方法である。この実験の概略図が図 4.2.1 である。赤い矢印で書かれた光が今回作成した光源によるものであり、他の光はこれまでの実験のものを用いている。今回の実験では $v=86$ の準位を探ることが目的であるため、赤い矢印の光の周波数をスイープした。周波数をスイープするときは、計算によって予想される周波数の近くを範囲を広めにスイープしていき、信号が見つかったらその部分を狭くスイープしなおしている。

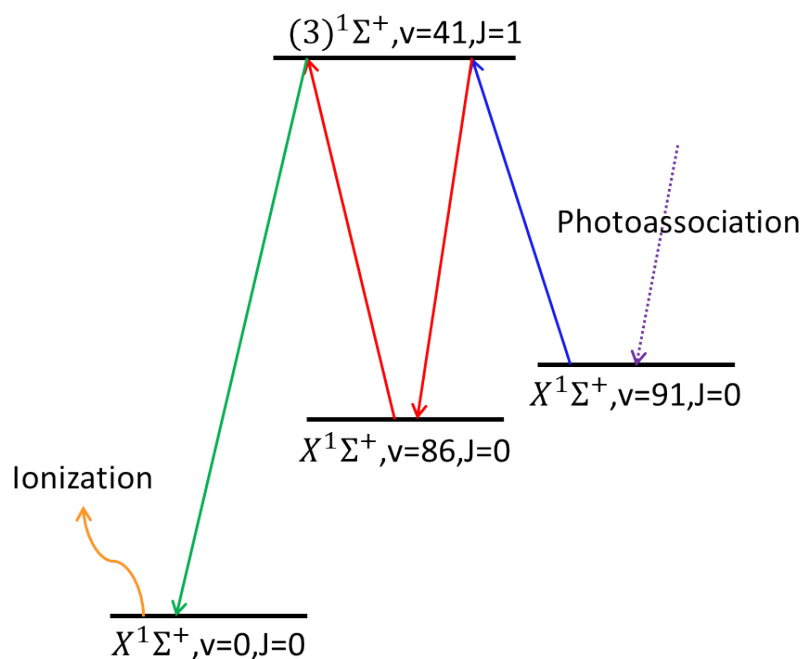


図 4.2.1 2 段の STIRAP

まず、励起状態を $(3)^1\Sigma^+(v=41, J=1, F_{\text{Rb}}=5/2, F=3)$ にして準位を探した。(以下では励起状態は常に $(3)^1\Sigma^+(v=41, J=1)$ の hyperfine level を使うため、励起状態は F_{Rb}, F の値で記述する。) これによって得られた信号が図 4.2.2 であり、そこからさらにスweepする幅を狭くして得られたものが図 4.2.3 である。1/2-prescaler を使用しているため実際の周波数オフセットはグラフ上のその 2 倍となっている。ここで見つかった準位は選択則より $F=2$ と推定される。 $F=2$ の準位が見つけれられたため次に見つけやすいであろう $F=1$ を探索したが、それらしい信号は得られなかった。これは $F=2$ に比べて STIRAP の効率が悪いから、STIRAP を 2 段行うことによって分子の数が大きく減ってしまったからだと考えられる。図の fitting はガウス関数 $\left(f = y_0 + A \exp\left[-\left(\frac{x-x_0}{width}\right)^2\right]\right)$ で行っている。

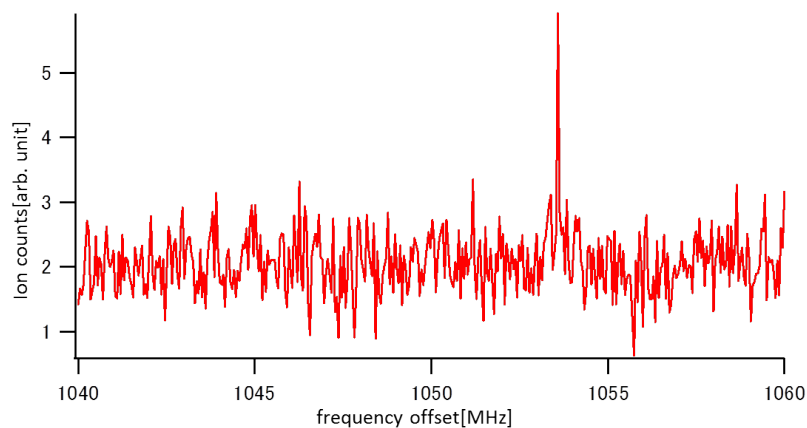


図 4.2.2 2 段の STIRAP によって得られた信号。周波数を 20MHz (実際は 40MHz) 振った。

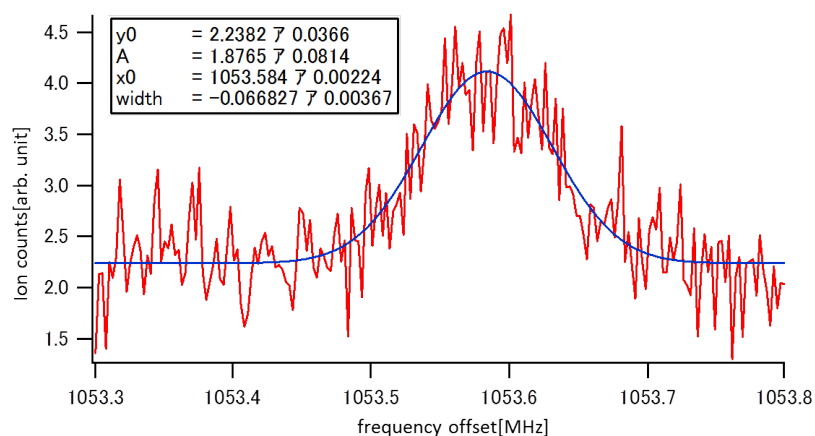


図 4.2.3 上の図で信号が出た部分を狭く取り直した信号。周波数を 0.5MHz (実際は 1MHz) 振った。

4.2.2 1 段の STIRAP による分光

2 段の STIRAP では $F=2$ の準位しか見つけられなかったため、STIRAP を 1 段だけにした。これによって全体の遷移効率があがるはずである。概略図は図 4.2.4 のようになっており、 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ にきた分子をイオン化してその数を検出している。

4.2.3 $X^1\Sigma^+(v=86, F_{Rb}=3/2)$ の分光

まずは励起状態を $(F_{Rb}=5/2, F=3)$ にし、周波数をスイープしていくと 2 段の STIRAP のときに見つかった $F=2$ の信号が得られることを確認した。次にまだ見つからない $F=0,1,3$ の準位を探すために、励起状態を $(F_{Rb}=5/2, F=2), (F_{Rb}=3/2, F=1), (F_{Rb}=3/2, F=2)$ と変えていきそれぞれの状態で周波数をスイープしていくとそれぞれの励起状態において $F=1, F=0, 2, F=1, 2, 3$ が見つかった。見つかった $F=0, 1, 3$ の信号の図はそれぞれ図 4.2.5、4.2.6、4.2.7 である。見つけられた遷移は表 4.1.2 において強くなると予想された遷移であり、表 4.1.2 による遷移強度の予想はうまくいったといえる。ここまでで $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ の hyperfine structure⁴ つがすべて見つけられた。また、

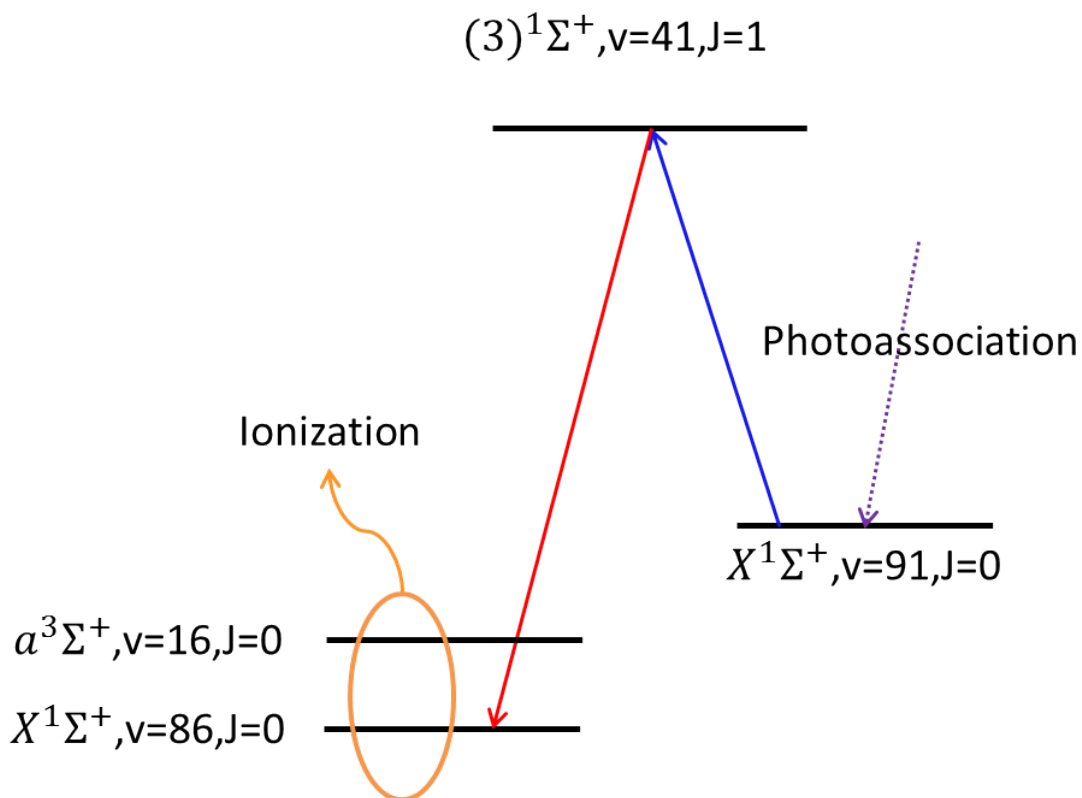


図 4.2.4 1 段の STIRAP

$(F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1), (F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ では複数の準位が見られたので、これらから準位間のエネルギー差が容易に求まる。ここまでの結果をまとめたものが図 4.2.8 である。

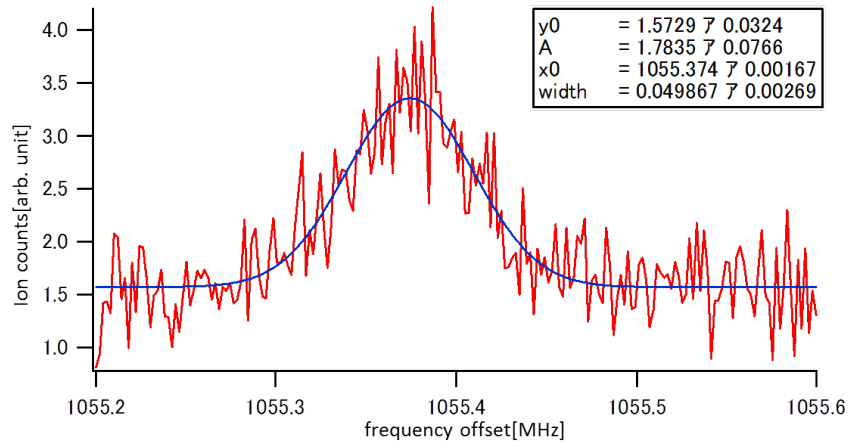


図 4.2.5 $X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$)

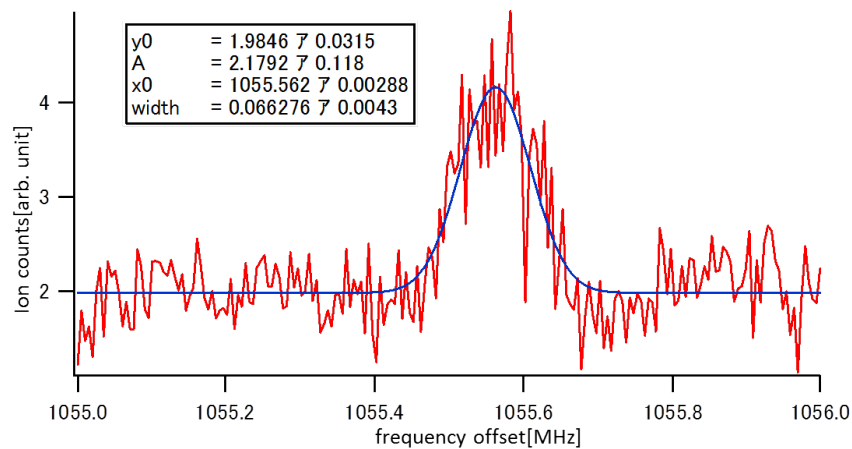


図 4.2.6 $X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 1$)

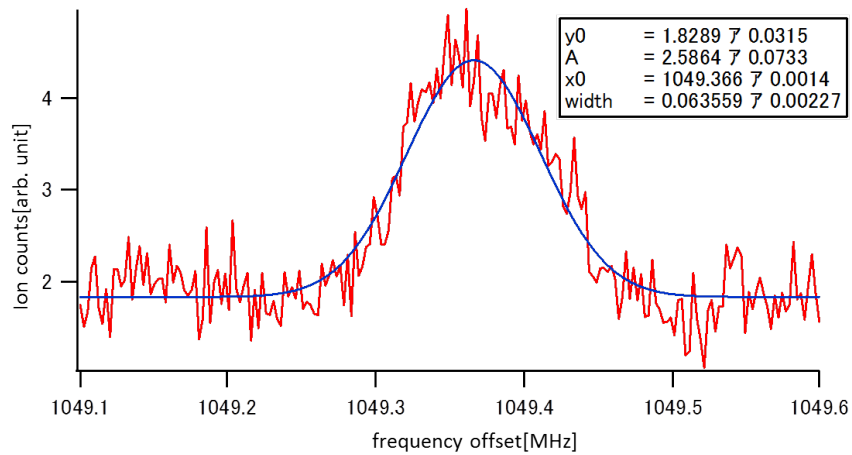


図 4.2.7 $X^1\Sigma^+(v=86, F_{Rb}=3/2, F=3)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{Rb}=3/2, F=2$)

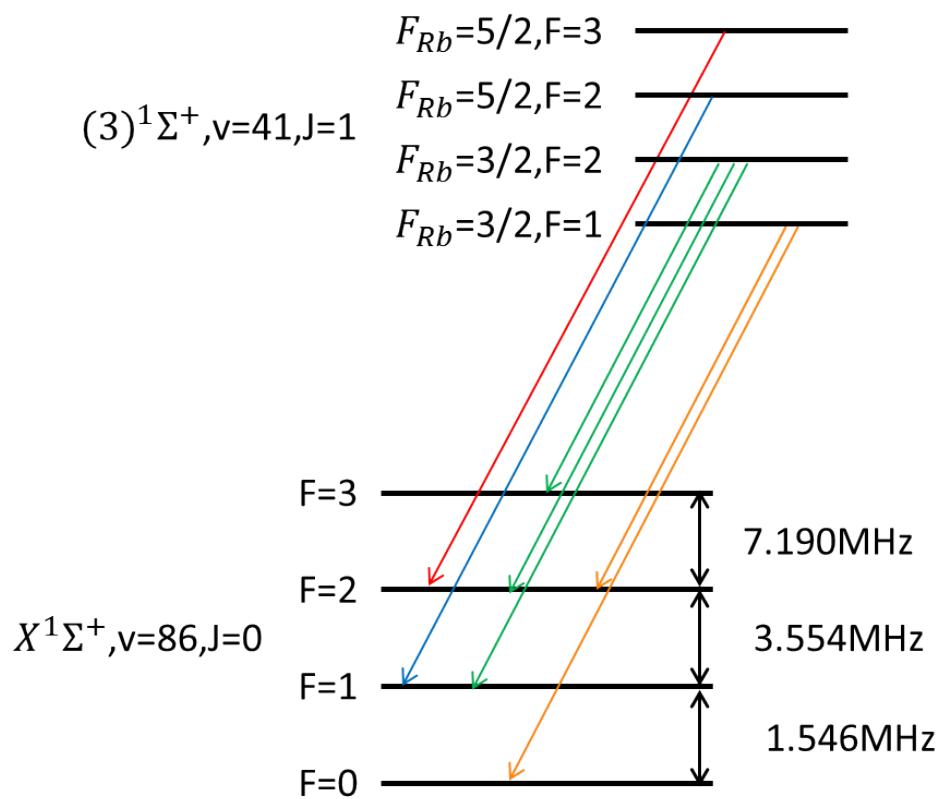


図 4.2.8 $X^1\Sigma^+(v=86)$ の準位の探索のまとめ (矢印が観測できた遷移)

4.2.4 これまでのデータによる計算値の fitting

ここまでで、 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ の分裂が実験で求めたのでこの結果をもとに残りの準位の位置を予測しなおす。最初の予測のときに使ったハミルトニアンにおいて $E_{86}-E_{16}$ と F_{86-16} の値を変化させていき、計算値が実験で求めた4つの準位間のエネルギーとほぼ同じになるような値を探した。その結果 $E_{86}-E_{16} = -4888 \text{ MHz}$, $F_{86-16} = 0.157545$ という値となり、このときのエネルギー等の計算値をまとめたものが表 4.2.1 である。この予測は最初のものに比べて、一番下の4つがほぼ一致しているためより良い予測となっているはずである。この予測にしたがって $a^3\Sigma^+(v=16, J=0)$ の分裂した準位を探していく。

表 4.2.1 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ の分裂の実験値から予測しなおしたエネルギー準位

エネルギー[MHz]	F	triplet component	singlet component	frequency offset[MHz]	一つ下とのエネルギー差[MHz]	実験値[MHz]
2658.26	4	1.0000000	0.0000000	-2763.33	100.15	
2558.11	3	0.9999888	0.0000112	-2713.26	76.38	
2481.74	2	0.9999897	0.0000103	-2675.07	51.53	
2430.20	1	0.9999955	0.0000045	-2649.30	4023.42	
-1593.22	3	0.9766651	0.0233349	-637.59	41.08	
-1634.29	2	0.9747183	0.0252817	-617.05	30.44	
-1664.74	1	0.9732021	0.0267979	-601.83	16.29	
-1681.02	0	0.9723630	0.0276370	-593.69	2539.18	
-4220.21	1	0.9989531	0.0010469	675.90	85.57	
-4305.78	2	0.9977601	0.0022399	718.69	661.02	
-4966.81	3	0.0233461	0.9766539	1049.20	7.20	7.19
-4974.01	2	0.0275319	0.9724681	1052.80	3.60	3.55
-4977.60	1	0.0278494	0.9721506	1054.60	1.55	1.55
-4979.15	0	0.0276370	0.9723630	1055.37		

4.2.5 Injection locking による光強度の増加

前節までで $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ から分裂した 4 つの準位をすべて観測することができたが、これらは計算値からわかるように **singlet component** の値が大きい ($\approx 97\%$) 準位である。一方、今から観測しようとしている $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ から分裂した準位の **singlet component** は 3% 以下と非常に小さい。この実験での STIRAP は始状態、中間状態ともに **singlet** の準位を使っており、STIRAP のハミルトニアンはスピン状態を変えないので、終状態は **singlet** にしか遷移できない。故に、 $a^3\Sigma^+, v = 16$ から分裂した準位を十分な S/N 比で観測するには、光の強度を上げて STIRAP の遷移効率を上げてやる必要がある。そこで我々は 872.5 nm の光源に対し **injection locking** を行うことで、光パワーを増やすことにした。

Injection locking とは LD に対して外部から光 (seed 光) を入射することにより、LD の誘導放出を起こして seed 光を増幅する方法である [35] [32]。具体的には図 3.1.14 において slave レーザーから STIRAP の実験系に向かう光のパスを図 4.2.9 のように組み変えることで実現できた。この光学系で、LD に流す電流を変化させたときの AOM 手前での光パワーをプロットしたものが図 4.2.10 である。このプロットは ECLD のときのような線形にはなっていない。**Injection locking** においては電流の増加に対してパワーが減少するような領域が存在することが知られており [35]、図のプロットでもパワーが横ばいになっている箇所が見られる。この領域では LD の発振が不安定であるから、このような電流値は避けたほうが良いであろう。

図 4.2.10 のように、**injection locking** によって AOM 手前で 60 mW 程度の光パワーを得ることができた。実際に STIRAP の系に行く光強度は、AOM の回折効率が約 80% 、ファイバーの **coupling** 効率が約 63% であったために 30 mW 程度であり、**injection locking** を行う前と比較すると 5 倍の強度が得られた。

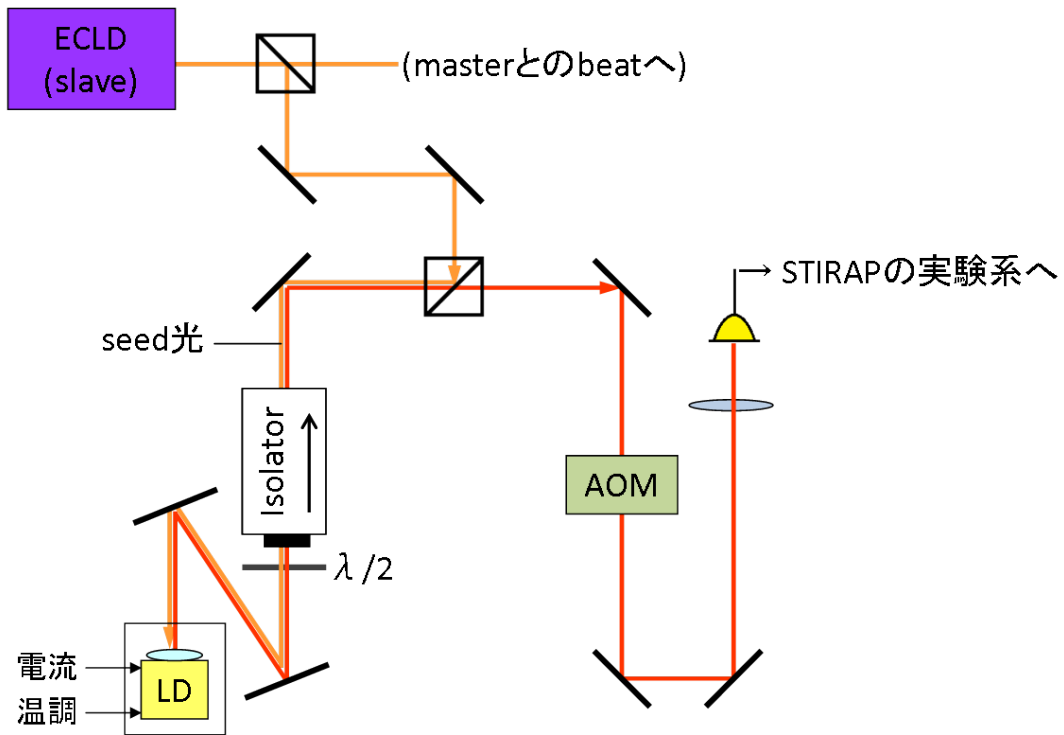


図 4.2.9 Injection locking のための光学系。アイソレータの output 側の偏光子を外していることに注意。

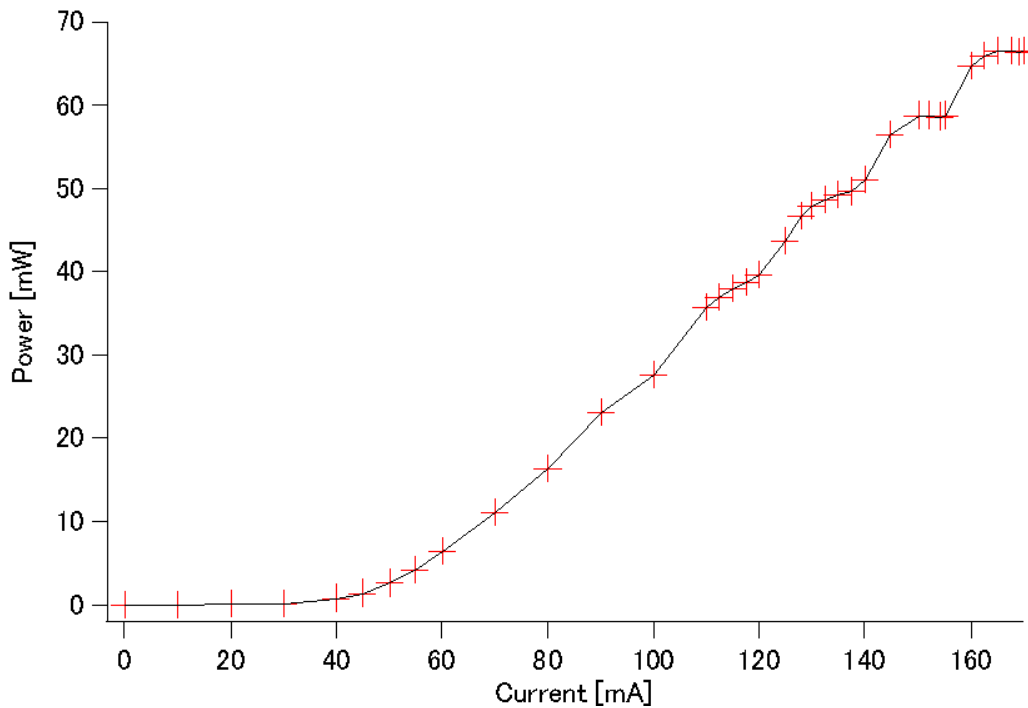


図 4.2.10 Injection locking した光の I-P 特性。赤の+がデータ点で、見やすさのためデータ点の間を直線で繋いでいる。

4.2.6 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の分光

前節の方法でパワーを上げた光源を用いて、 $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ から分裂した準位を探索する。まず我々は singlet component の値が比較的大きい $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の 4 つの準位 ($F = 3, 2, 1, 0$) の探索を行った。計算によれば、これら 4 つの準位は $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ の観測の際に master レーザーをロックした ULE cavity の櫛よりも周波数が低い位置にあると予想される。そのため本節の実験では、ULE cavity にロックする櫛はそのまま、slave レーザーに付けるオフセットを負の値にして周波数を掃引している。

はじめに励起状態を $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 3$ に合わせて分子準位の探索を行った。この励起状態では $X^1\Sigma^+, v = 86$ のときと同様に $F = 2$ の準位が強く見えることが期待され、実際にファンクションジェネレータの値にして 540 MHz 付近で図 4.2.11 のような信号が観測された。この信号を拡大して見たものが図 4.2.12 であり、5 つに分裂していることがわかる。これは磁気光学トラップ (MOT) を切った後も磁場がわずかに残っていることにより、 $F = 2$ の準位が $2F + 1 = 5$ 個の磁気副準位にゼーマン分裂したためと考えられる。このことを確かめるため、MOT を切ってから STIRAP を行うまでの待ち時間を変えることで残留磁場の大きさを変化させ、同じ信号を観測した。図 4.2.12、図 4.2.13、図 4.2.14 はそれぞれ待ち時間が 200 μs , 400 μs , 1000 μs のときの信号である。3 つの場合を比較すると、待ち時間が長いほど残留磁場が弱くなるために分裂が小さくなる様子が観察された。これにより、MOT 後の待ち時間が短いときの分裂はゼーマン効果によるものであることが確認できた。

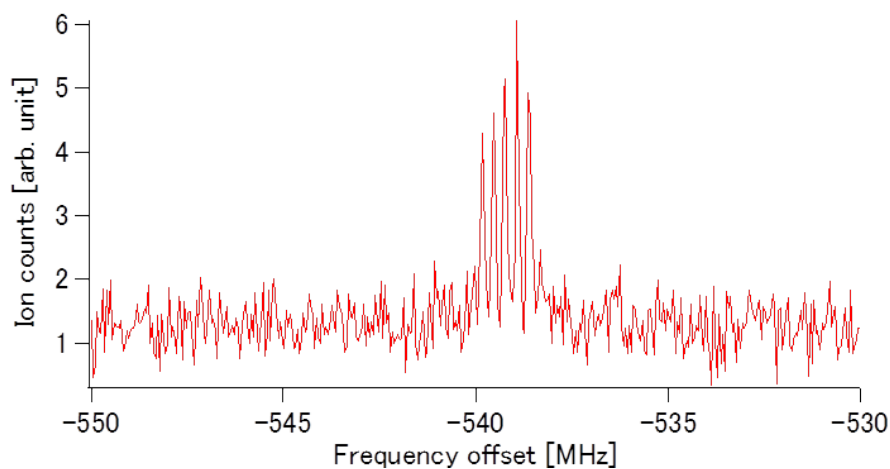


図 4.2.11 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 5/2, F = 3$)

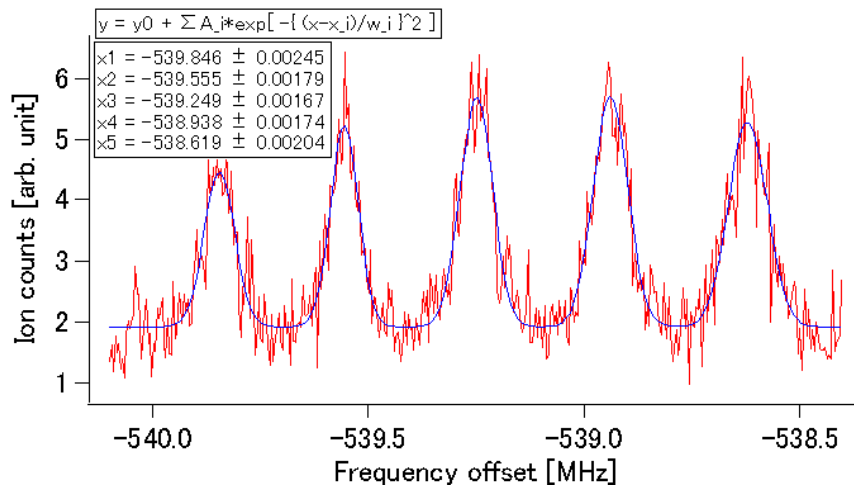


図 4.2.12 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=2)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $200 \mu\text{s}$)

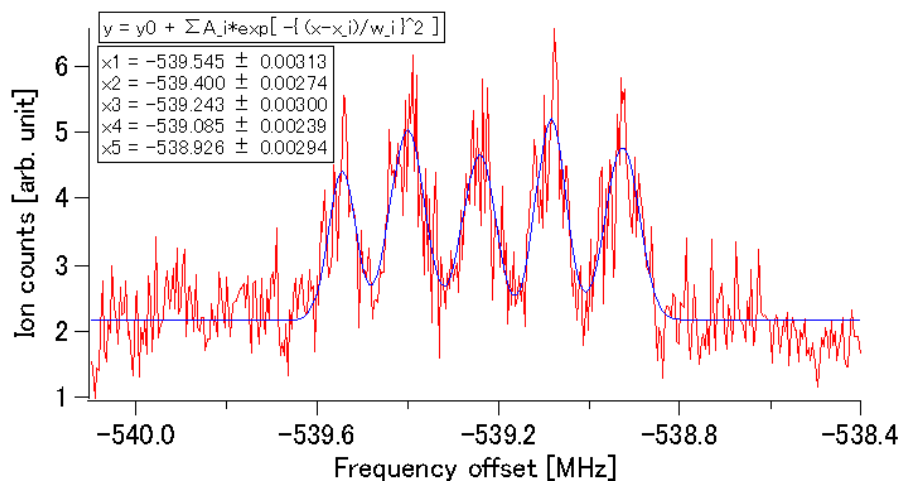


図 4.2.13 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=2)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $400 \mu\text{s}$)

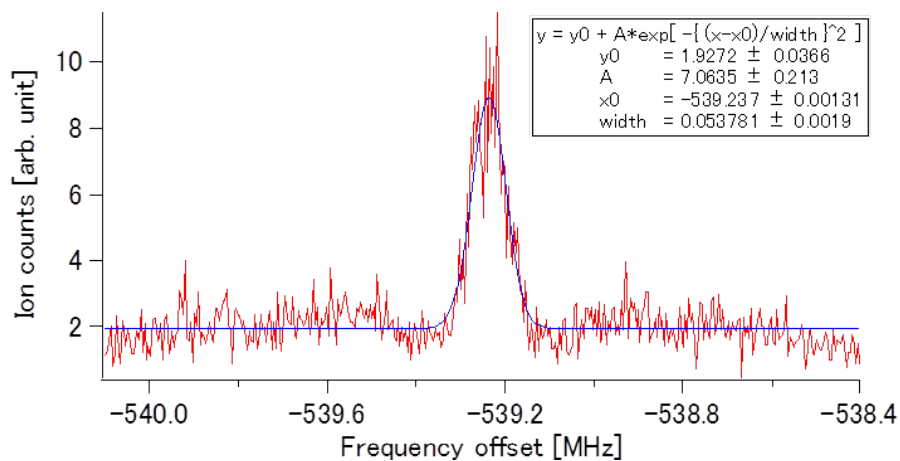


図 4.2.14 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=2)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)

次に、励起状態を $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$ に合わせて別の準位を探索した。この励起状態では $F = 1, 2, 3$ の信号が見えると期待される。MOT を切ったからの待ち時間を $200 \mu\text{s}$ としたときは、 525 MHz 付近に図 4.2.15 のような信号が観測された。これを拡大して見たものが図 4.2.16 であり、3 つに分裂していることから $F = 1$ の信号と考えられる。同様にして磁場の大きさを変えたものが図 4.2.17 および図 4.2.18 で、それぞれ待ち時間が $400 \mu\text{s}$, $1000 \mu\text{s}$ の場合である。図 4.2.12-4.2.14 と同じ振る舞いが見られるので、この分裂がゼーマン効果によるものと確認できた。なお、分裂した信号が非対称になっているのは 2 次のゼーマン効果 (磁場の 2 乗に比例) によるシフトと考えられる。

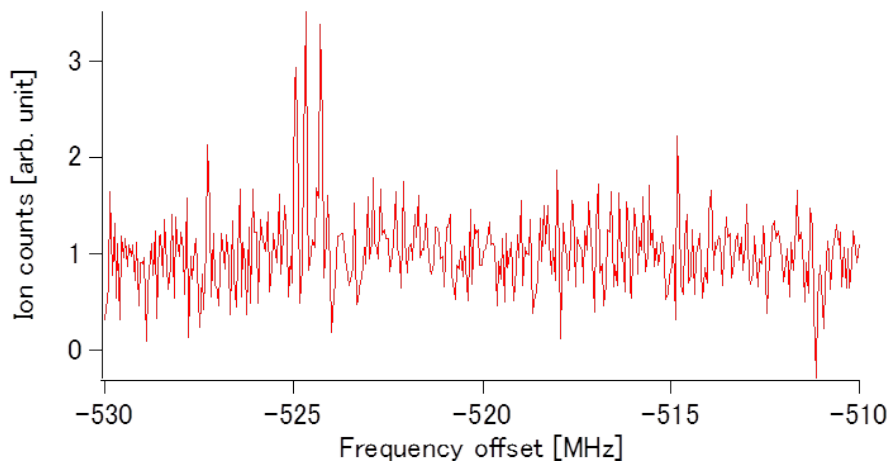


図 4.2.15 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$)

MOT 後の待ち時間が $200 \mu\text{s}$ のときは上記の $F = 1$ の信号しか確認できなかったため、待ち時間を $1000 \mu\text{s}$ に変えて再び周波数を掃引した。すると図 4.2.19 および図 4.2.20 のように、それぞれ $F = 2, F = 3$ と考えられる信号が見つかった。待ち時間 $200 \mu\text{s}$ でこれらの準位が見つからなかったのは、ゼーマン分裂によってピーク 1 本 1 本の信号強度が落ちていたためと考えられる。実際に図 4.2.20 の信号が見えた後で待ち時間を $400 \mu\text{s}$ にして同様の信号を取ったものが図 4.2.21 である。 $F = 3$ であるから 7 つのピークが見えると予想されるが、S/N 比がかなり悪くなっており確認できない。このことを踏まえて、以降は待ち時間を始めから $1000 \mu\text{s}$ にして準位の探索をすることにした。

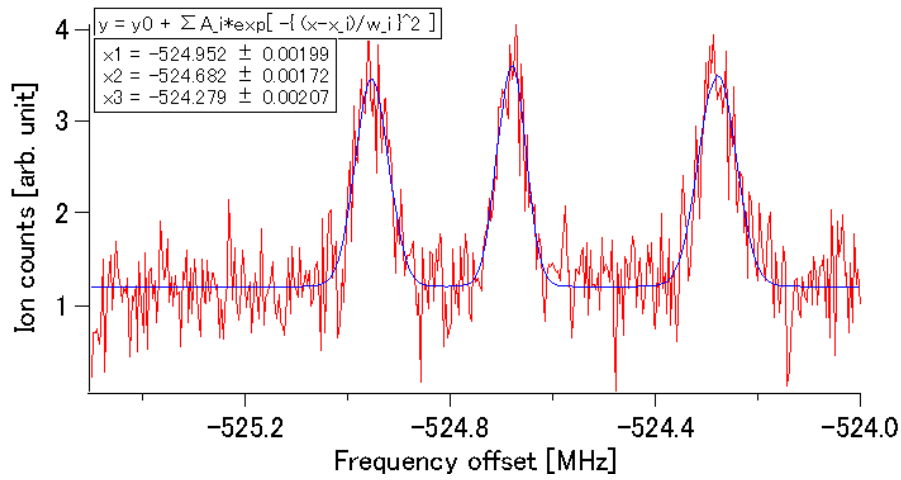


図 4.2.16 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=1)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $200 \mu\text{s}$)

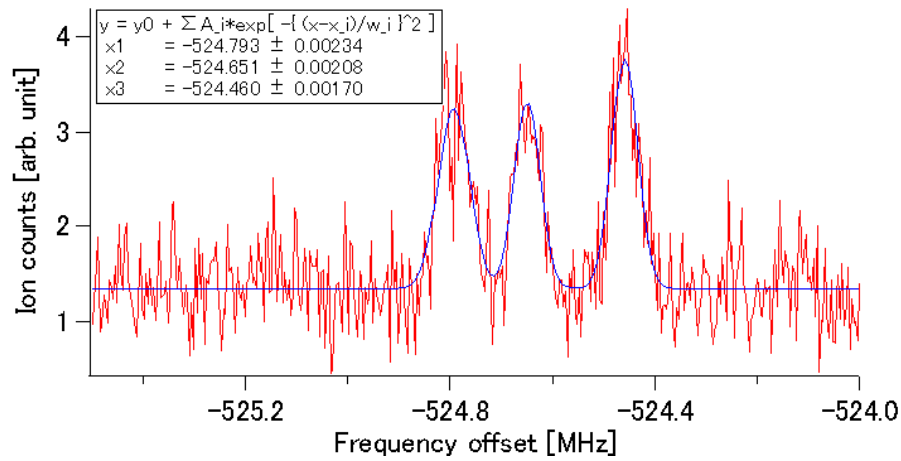


図 4.2.17 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=1)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $400 \mu\text{s}$)

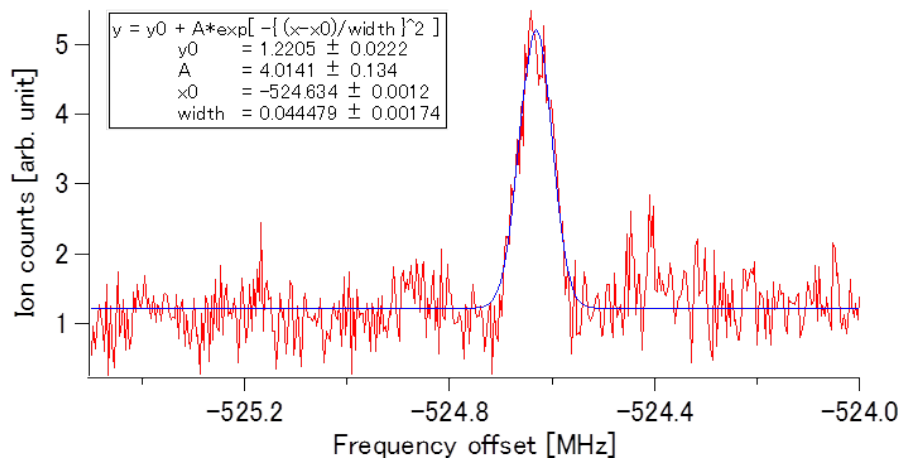


図 4.2.18 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=1)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)

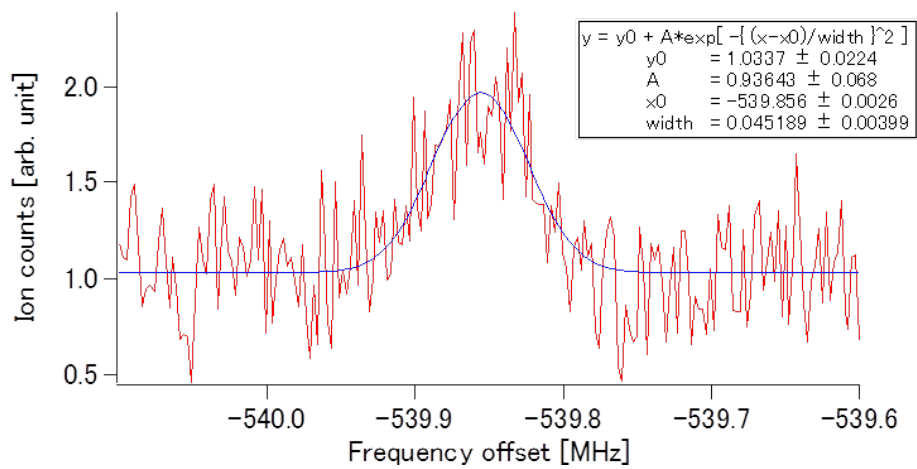


図 4.2.19 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$)

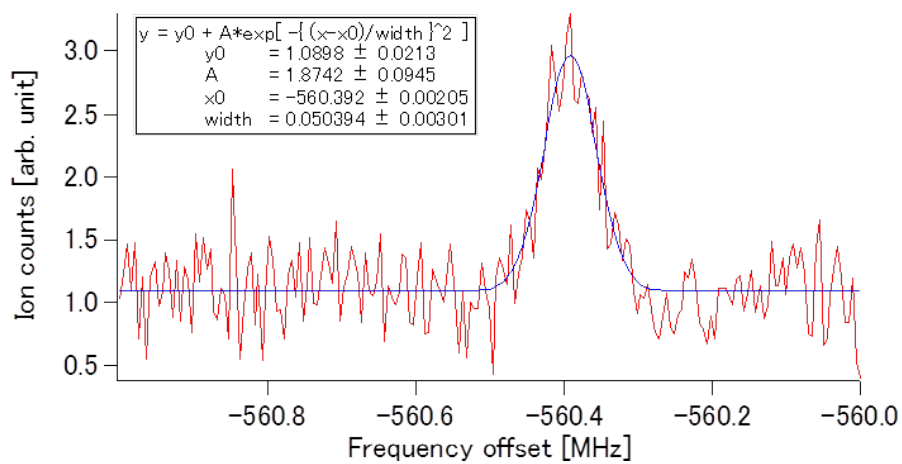


図 4.2.20 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 3)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$, 待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)

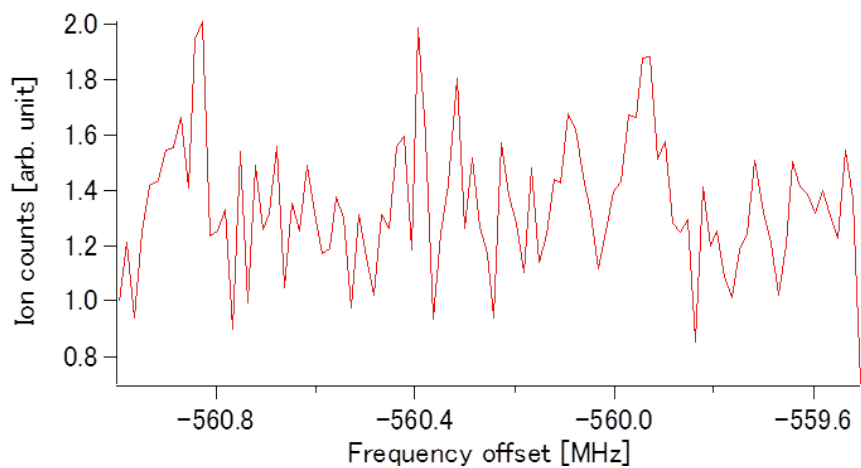


図 4.2.21 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 3)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $400 \mu\text{s}$)

最後に、4つのうちまだ観測されていない $F = 0$ の準位を探すため、励起状態を $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$ に合わせた。この状態では $F = 0, 2$ の信号が得られるはずである。まず $F = 2$ の準位を探したところ、図 4.2.22 のような信号が観測された。これはほかの励起状態で見た $F = 2$ の信号 (図 4.2.14, 4.2.19) と中心周波数がほぼ同じところにあるので、 $F = 2$ の準位と考えられる。 $F = 0$ についてはファンクションジェネレータの値で 517 MHz の付近にそれらしい信号が見られた (図 4.2.23)。これを拡大して見たものが図 4.2.24 であり、MOT 後の待ち時間は 1000 μs で磁場の弱い状態である。この信号が $F = 0$ であるならば、磁気副準位も $m_F = 0$ のひとつだけなので、磁場をかけてもピークが分裂しないはずである。実際に待ち時間を 200 μs にして見た信号が図 4.2.25 で、ピークは分裂しなかった。これにより $F = 0$ が観測できたのを確かめることができた。なお、図 4.2.24 と 4.2.25 とでピークの中心周波数がわずかにずれているのは 2 次のゼーマン効果によるシフトと考えられる。

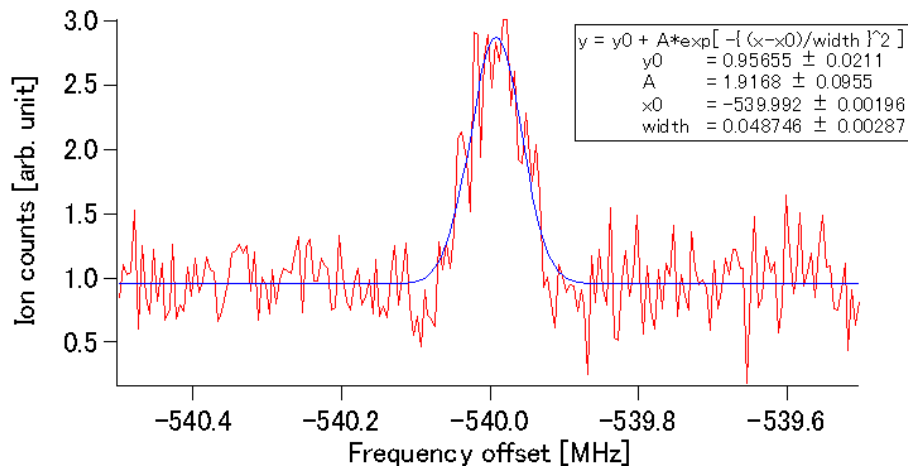


図 4.2.22 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$)

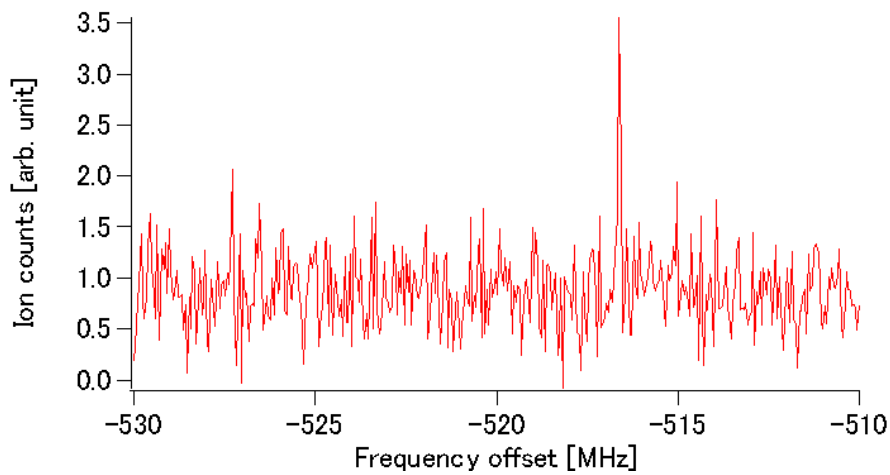


図 4.2.23 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1$)

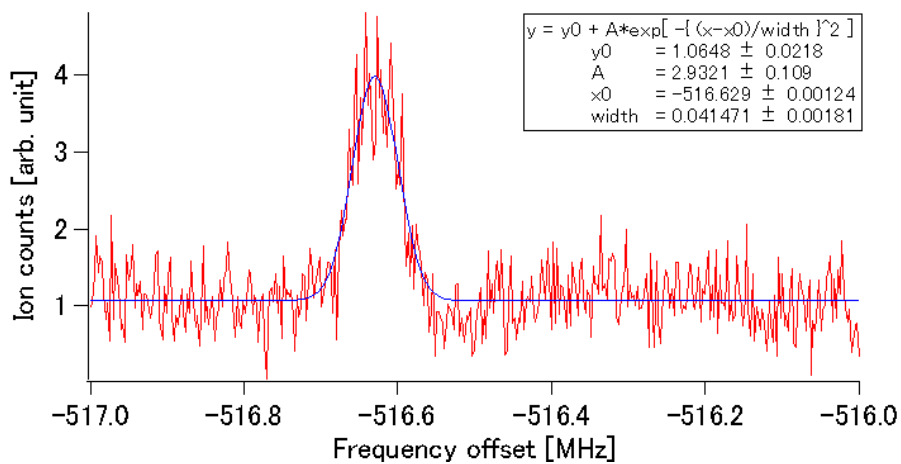


図 4.2.24 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $1000 \mu\text{s}$)

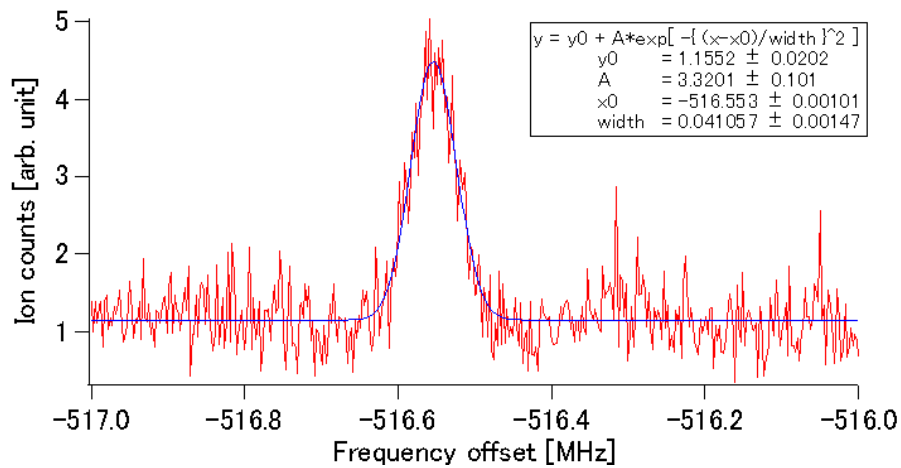


図 4.2.25 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0)$ の STIRAP 信号 (待ち時間 $200 \mu\text{s}$)

以上で $a^3\Sigma^+(v=16, F_{\text{Rb}}=3/2)$ から分裂した4つの準位 $F=3, 2, 1, 0$ をすべて観測することができた。これまでの結果から4つの準位の間隔を計算すると図4.2.26のようになった。

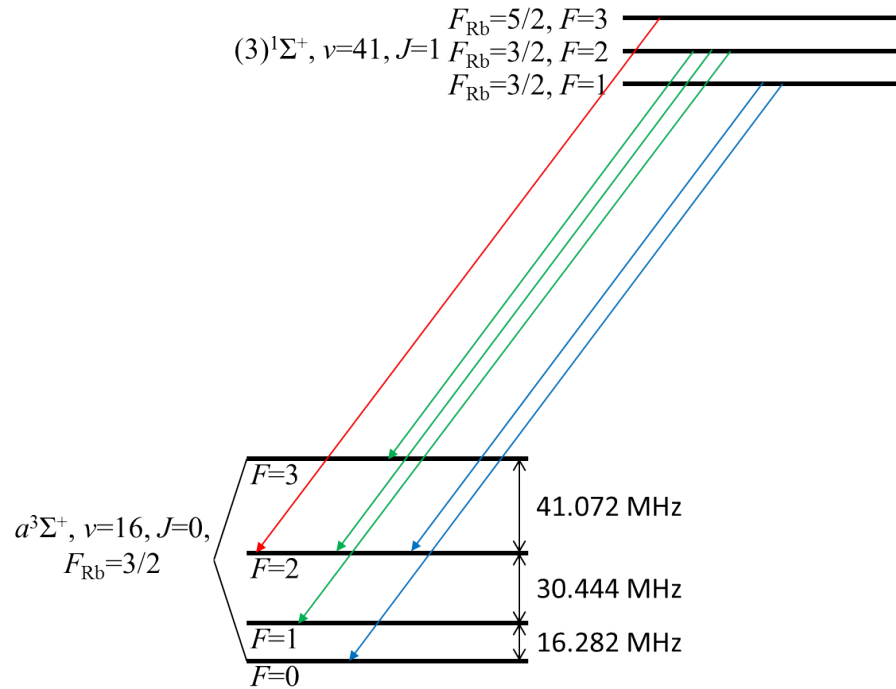


図 4.2.26 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{\text{Rb}}=3/2)$ の準位の探索のまとめ

4.2.7 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{\text{Rb}}=1/2)$ の分光

次に我々は $a^3\Sigma^+(v=16, F_{\text{Rb}}=1/2)$ の2つの準位 ($F=2, 1$) の探索を行った。計算ではこれら2つの準位の singlet component の値は 0.1 - 0.2% 程度と、前節で見た4つの準位の 1/10 ほどである。このため今のセットアップでは遷移効率が十分でなく信号が見えない、という事態も起こり得たが、実際に周波数を掃引してみると S/N 比はやや落ちるものの $F=2, 1$ の準位を両方とも見つけることができた。なお、ULE cavity にロックする楯は変えず、slave レーザーに付けるオフセットは正の値に再び戻した。

まず $F=2$ については、これが強く見える励起状態 $F_{\text{Rb}}=5/2, F=3$ を使って探索した。するとファンクションジェネレータの値で 781 MHz 付近に、図 4.2.27 のような信号が見えた。このときの MOT 後の待ち時間は 1000 μs である。待ち時間を 200 μs に変えて同じ信号を観測したものが図 4.2.28 であり、ピークが 5 つに分かれた。これにより観測された信号が $F=2$ のものであることが確認できた。

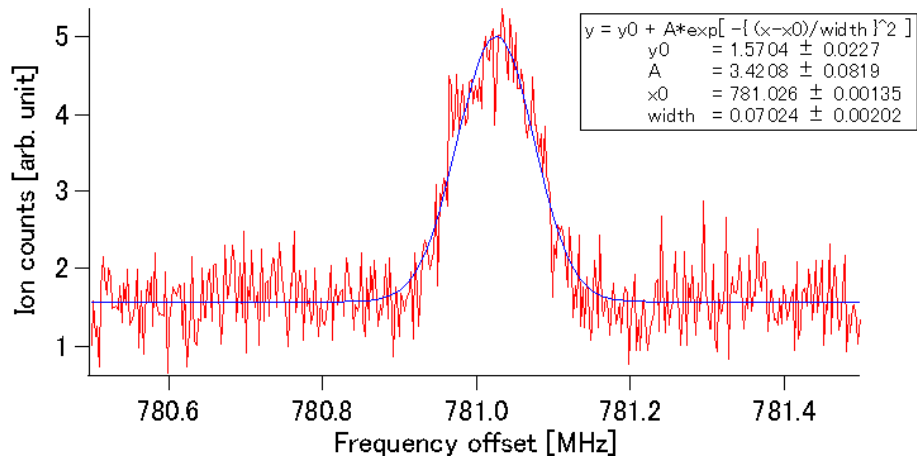


図 4.2.27 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=1/2, F=2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{Rb}=5/2, F=3$, 待ち時間 $1000 \mu s$)

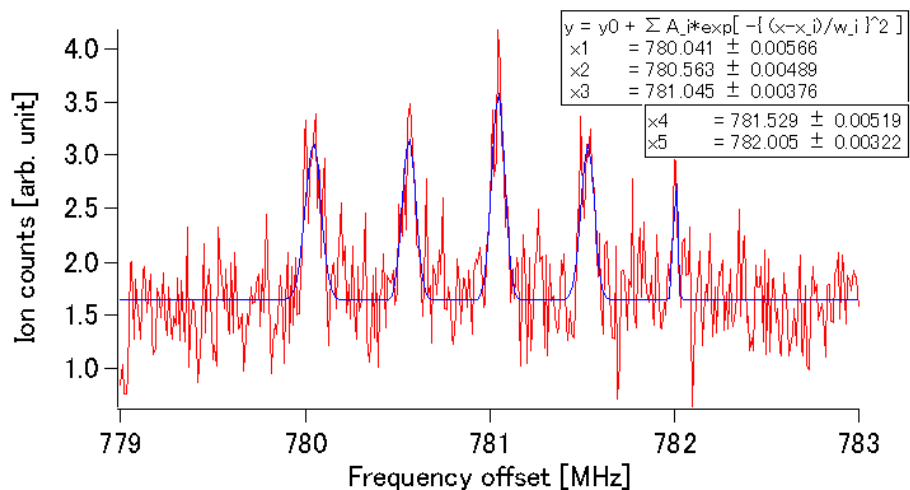


図 4.2.28 $a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=1/2, F=2)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{Rb}=5/2, F=3$, 待ち時間 $200 \mu s$)

次に $F = 1$ については、 $F = 1, 2, 3$ の準位が見える励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$ を使って探索した。今の場合 $F = 3$ の準位はないので $F = 2, 1$ の2つの信号が出るのが期待されたが、図 4.2.27 の信号が見えた周波数の近辺を掃引しても $F = 2$ と思われる信号は見つからなかった。これは遷移効率が不十分で $F = 2$ の信号がノイズに埋もれてしまったためと考えられる。 $F = 1$ の方はファンクションジェネレータの値にして 738 MHz 付近に図 4.2.29 のような弱い信号が見えた。MOT 後の待ち時間を 1000 μs から 200 μs に変えたものが図 4.2.30 であり、信号が弱いもののピークが3つに分かれたのが確認できる。このことから信号が $F = 1$ のものと分かった。

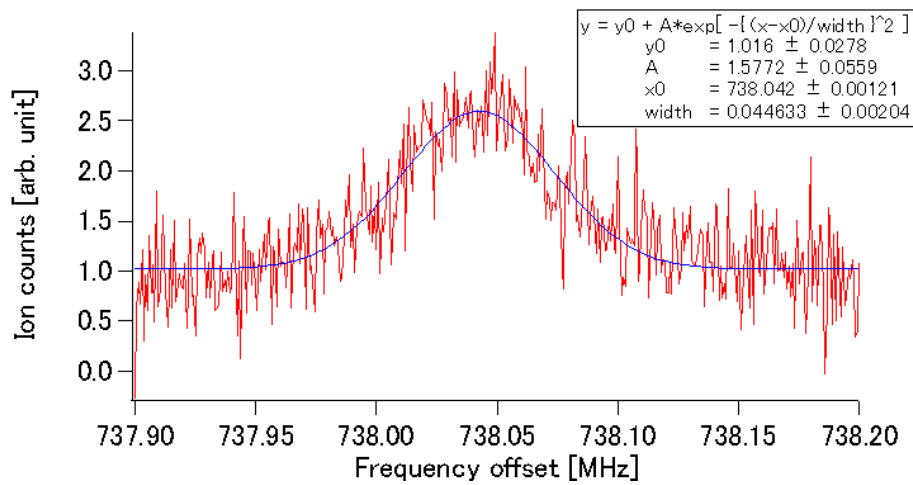


図 4.2.29 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$, 待ち時間 1000 μs)

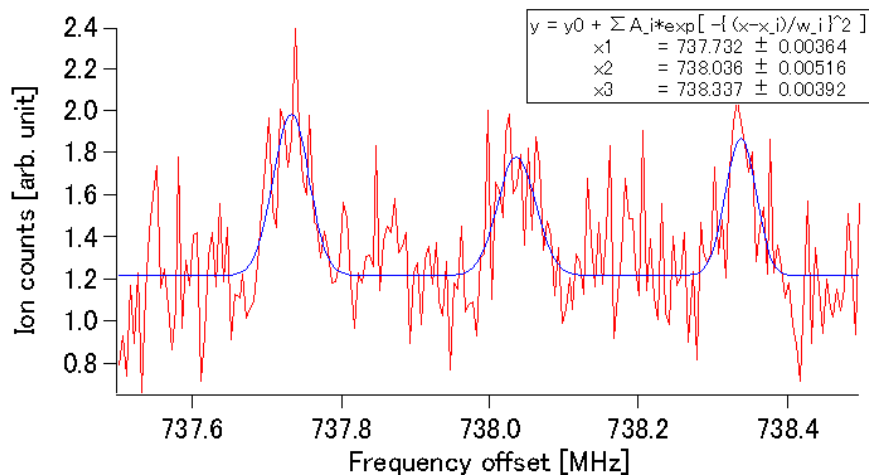


図 4.2.30 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 1)$ の STIRAP 信号 (励起状態 $F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 2$, 待ち時間 200 μs)

本節までの結果から 2 つの準位の間隔はおよそ 84.7 MHz と求められた (図 4.2.31)。ここまでの探索で、 $X^1\Sigma^+, v = 86$ と $a^3\Sigma^+, v = 16$ の mixing によってできる 14 個の超微細構造のうち 10 個を観測することに成功した。残る 4 つの準位は $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 5/2)$ から分裂する $F = 4, 3, 2, 1$ の準位であるが、これらは singlet component が最大でも 0.001 % 程度と本節で見た $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の 2 つの 1/200 しかなく、現状の光パワーでは観測が困難と考えられる。このため我々はこれら 4 つの準位の探索は行わず、得られた 10 個の準位のデータを基にして考察を行う。

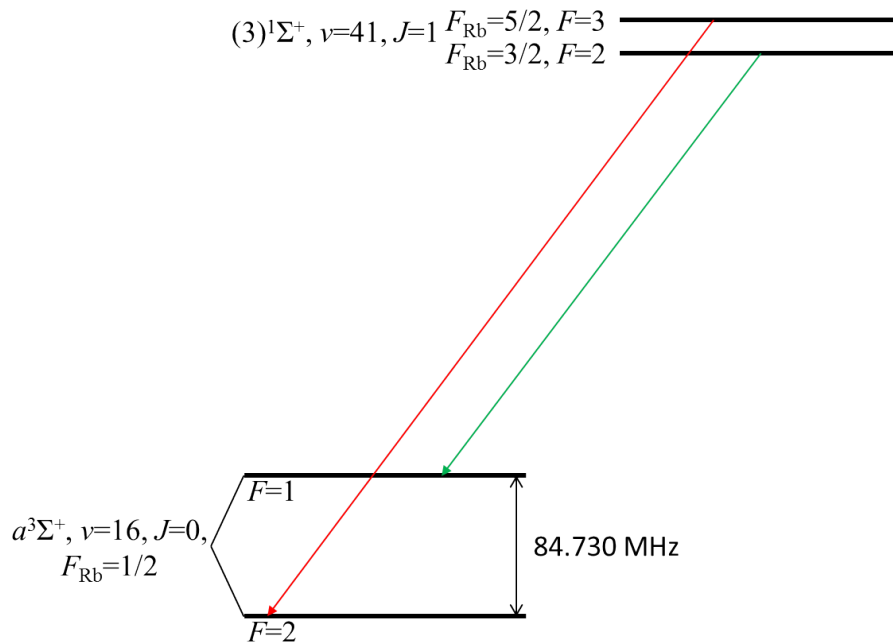


図 4.2.31 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2)$ の準位の探索のまとめ

4.3 STIRAP による分光のまとめ

4.3.1 計算値の fitting

ここまでの実験によって $a^3\Sigma^+(v=16, J=0)$ の hyperfine による準位 10 個のうち 6 個、 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ の hyperfine による準位 4 個のエネルギーがわかった。これらの結果から再び、エネルギー準位の fitting を行った。今回は $E_{86} - E_{16}$ と F_{86-16} だけでなく、 A_K と A_{Rb} も変更した。その結果 $E_{86} - E_{16} = -4725.8936$ MHz, $F_{86-16} = 0.151566$, $A_{Rb} = 3383.0998$ MHz, $A_K = 127.006$ MHz となった。LEVEL によるポテンシャルからの計算によると $E_{86} - E_{16} = -4186.3$ MHz であり、540 MHz 程度ずれている。このずれは計算に用いたポテンシャルの形 [26][27] の不正確さからきていると考えられる。このときの計算値は表 4.3.1 である。fitting の結果、 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ の状態では triplet component が 2% 程度あることがわかった。これはマイクロ波遷移に十分な mixing である。

表 4.3.1 $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ と $a^3\Sigma^+(v=16, J=0)$ の分裂の実験値から予測しなおしたエネルギー準位

エネルギー [MHz]	F	triplet component	singlet component	frequency offset [MHz]	一つ下とのエネルギー差 [MHz]	実験値 [MHz]
2632.58	4	1.0000000	0.0000000	-2667.25	100.14	
2532.44	3	0.9999891	0.0000109	-2617.18	76.38	
2456.06	2	0.9999900	0.0000100	-2579.00	51.54	
2404.53	1	0.9999956	0.0000044	-2553.23	3984.61	
-1580.08	3	0.9767896	0.0232104	-560.92	41.23	41.072
-1621.31	2	0.9748078	0.0251922	-540.31	30.59	30.444
-1651.90	1	0.9732596	0.0267404	-525.02	16.38	16.282
-1668.27	0	0.9724010	0.0275990	-516.83	2509.07	2509.07
-4177.34	1	0.9986116	0.0013884	737.71	85.47	84.73
-4262.81	2	0.9968745	0.0031255	780.44	537.92	537.918
-4800.73	3	0.0232213	0.9767787	1049.40	7.22	7.19
-4807.95	2	0.0283276	0.9716724	1053.01	3.34	3.554
-4811.29	1	0.0281332	0.9718668	1054.68	1.39	1.546
-4812.68	0	0.0275990	0.9724010	1055.37		

4.3.2 m_e/m_p の変化に対する感度

振動準位の $\mu = m_e/m_p$ の変化に対する感度は、分子の換算質量を変化させたときの振動準位のエネルギーの変化を計算することで求められる。分子の換算質量が $m_1 = 27.84023379$ から $m_2 = 27.37567062$ へ変化したとしてそれに対する $X^1\Sigma^+$ と $a^3\Sigma^+$ のエネルギー感度を計算した。その結果のグラフが図 4.3.1 である。図 4.3.2 の緑の点が $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ であり、この 2 準位のエネルギー感度の差が 2.1.3 節の $\partial_\mu\Omega$ であり、 $\partial_\mu\Omega$ を 2 準位間の周波数で割った値が増幅率 (Enhancement) である。これらの値が大きい程 m_e/m_p の検出に適している。今回の実験結果から $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の間の遷移の増幅率は 14938 となった。先行研究の $X^1\Sigma^+(v = 91, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 22, J = 0)$ の間の遷移と比較した表が表 4.3.2 であり、 $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ - $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ 間の方が m_e/m_p の検出に適していることがわかる。

表 4.3.2 91-22 と 86-16 の比較

	f[MHz]	$\partial_\mu\Omega$ [THz]	Enhancement
①91-22	2441	3.534	1448
②86-16	634.9	9.485	14938
②/①	0.26	2.68	10.32

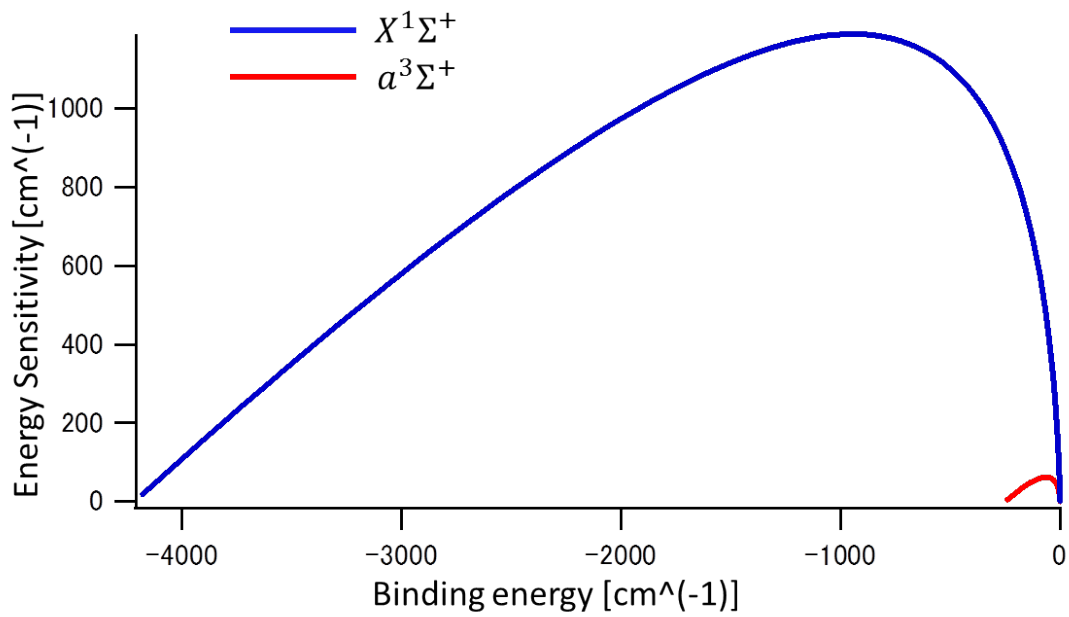


図 4.3.1 $X^1\Sigma^+$ と $a^3\Sigma^+$ の m_e/m_p に対する感度

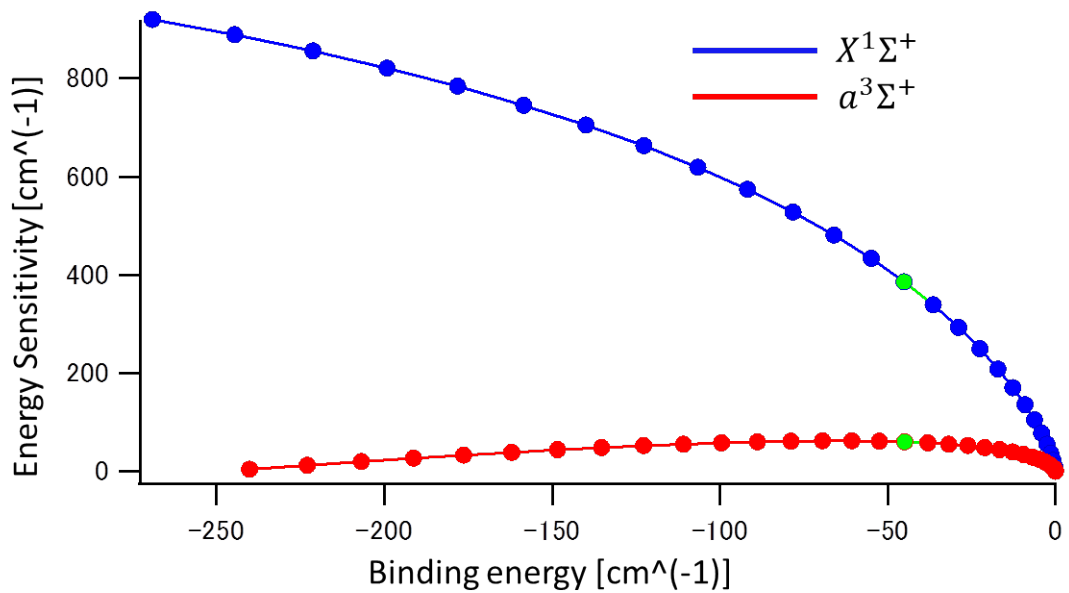


図 4.3.2 上のグラフの $a^3\Sigma^+$ の部分の拡大図。緑の点が今回の実験で測定した $X^1\Sigma^+(v=86, J=0)$ と $a^3\Sigma^+(v=16, J=0)$ である。

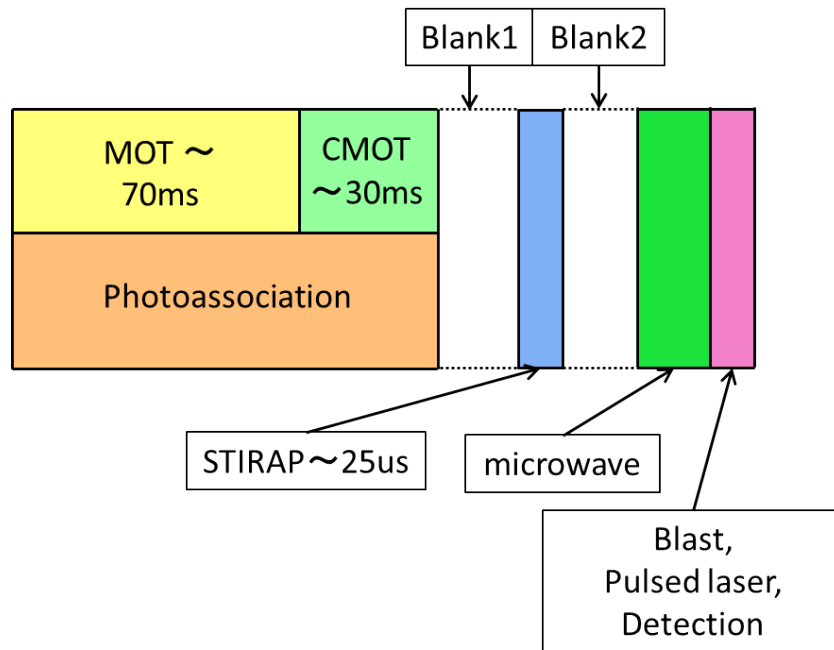


図 4.4.2 マイクロ波遷移のタイムライン

マイクロ波の周波数をスイープして実験を行った結果、図 4.4.3 のような信号が見られ、634.96MHz あたりでマイクロ波遷移が成功していることがわかった。遷移の起こった部分を狭い範囲で取り直したものが図 4.4.4 である。

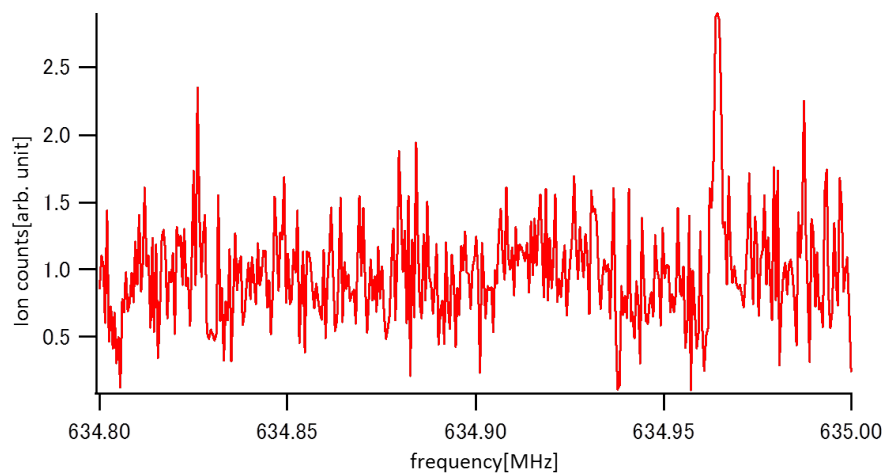


図 4.4.3 マイクロ波遷移によって得られた信号

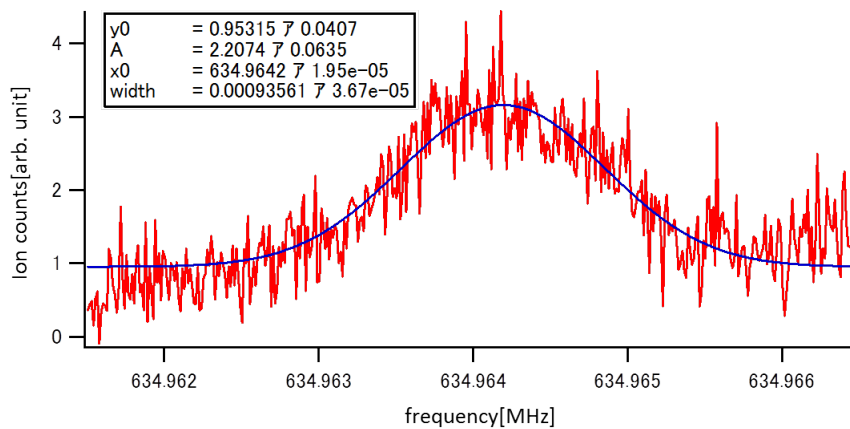
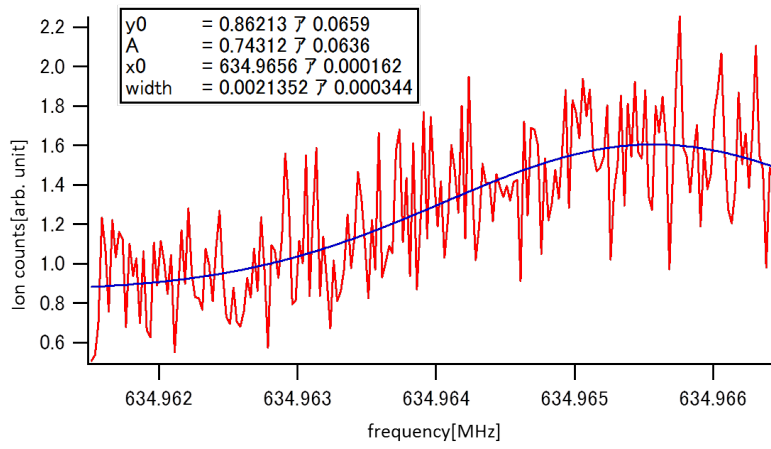
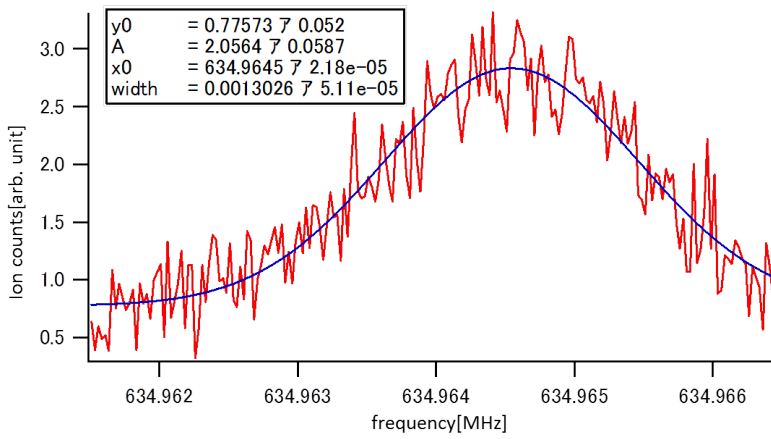
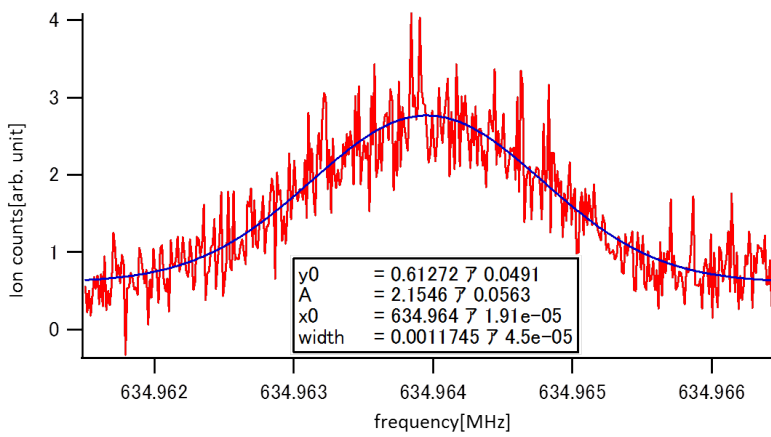


図 4.4.4 狭い範囲で取り直したもの

磁場依存性

図 4.4.4 のデータはタイムラインにおいて **Blank1** が $200\mu\text{s}$ 、**Blank2** が 0s 、microwave を当てる時間が $1000\mu\text{s}$ という値で行った。**Blank1** が短いので、マイクロ波遷移を行うときに磁場が残っている。この磁場による 2 次のゼーマンシフトをみるために、**Blank2** を変えて信号をとってみた。**Blank1**、microwave は $200\mu\text{s}$ 、 $500\mu\text{s}$ で固定している。**Blank2** を $0\mu\text{s}$ 、 $200\mu\text{s}$ 、 $400\mu\text{s}$ 、 $600\mu\text{s}$ 、 $800\mu\text{s}$ としてとったものがそれぞれ図 4.4.5, 図 4.4.6, 図 4.4.7, 図 4.4.8, 図 4.4.9 となっている。**Blank2** が長いほど、つまり磁場が少ないほど周波数が小さくなっていることがわかる。 $600\mu\text{s}$ と $800\mu\text{s}$ では 1 次のゼーマンシフトによって大きく分裂していた準位が近くにきているため、信号が広がってしまっている。**Blank2** の大きさに対してマイクロ波の周波数をプロットしたものが図 4.4.10 である。先行研究により磁場の切れる時定数がおおよそ $300\mu\text{s}$ と求まっており、それと矛盾のない結果となった。磁場による準位の変化をよく見るには、今回のように残留磁場によるシフトを見るのではなく、新たに外から磁場をかける機構を作り、それによって磁場を制御する必要がある。

図 4.4.5 Blank2=0 μs 図 4.4.6 Blank2=200 μs 図 4.4.7 Blank2=400 μs

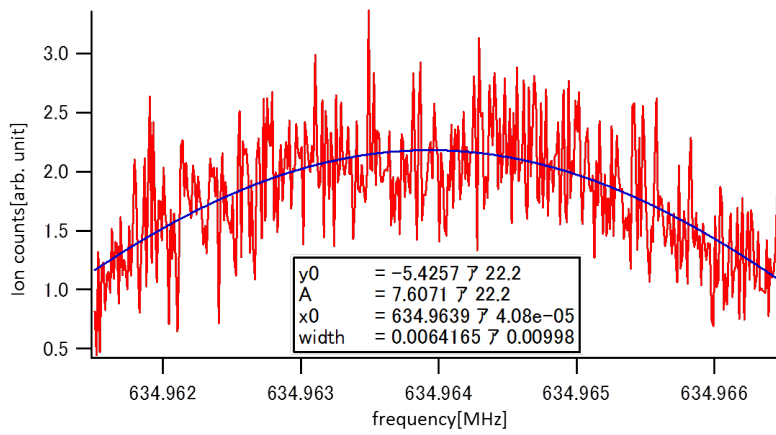


図 4.4.8 Blank2=600 μs

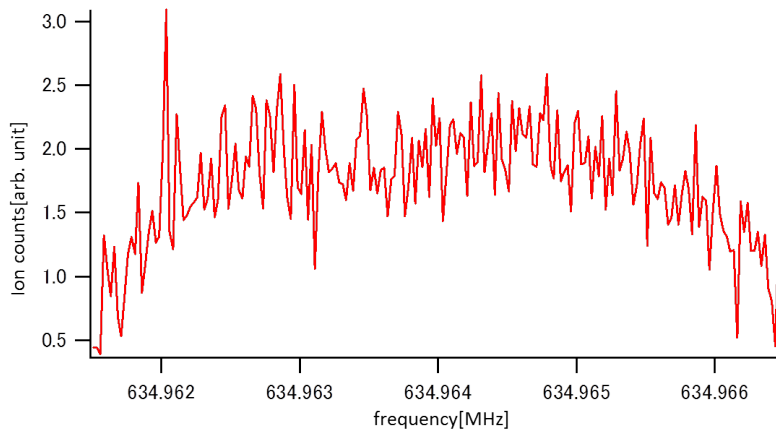


図 4.4.9 Blank2=800 μs

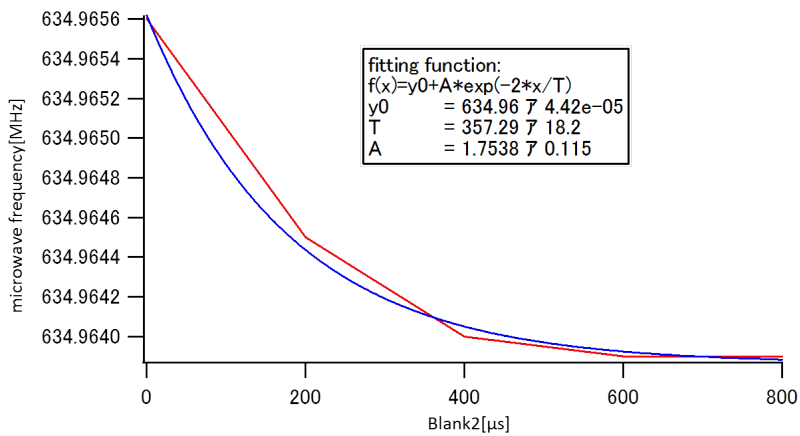


図 4.4.10 磁場の減衰に対する周波数の変化

第 5 章

まとめと展望

本研究において我々は、 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ 分子の $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ 間の遷移周波数が電子・陽子質量比 μ の変化に対して敏感であるという予想のもとに、これらの超微細構造を STIRAP により分光し、 μ に対する感度を実際に求めた。

STIRAP を使った分子準位の探索は、主に以下に基づき達成された:

- STIRAP の中間状態 $(3)^1\Sigma^+, v = 41$ から $X^1\Sigma^+, v = 86$ および $a^3\Sigma^+, v = 16$ への遷移周波数に対応する波長 872.5 nm 付近の ECLD の作製 (3.1 節)
- 作製した ECLD を ULE cavity へロックすることによる線幅の 1 kHz 以下への狭帯化と、offset lock による可変な周波数オフセットの付加 (3.2, 3.3 節)
- AOM を用いた実験時間 10 μs 程度の間での光強度の変調 (4.1.1 節)
- LEVEL および mathematica による分子準位の位置の予測 (4.1.3 節)
- 遷移強度の計算に基づく適切な中間状態の準位の選択 (4.1.4 節)

これらの実行により、まず我々は STIRAP を 2 回行う方法で 1 つの準位を見つけることができた (4.2.1 節)。この方法では他の準位を見出せなかったため、STIRAP を 1 回に変更すると、 $X^1\Sigma^+, v = 86$ から分裂した 4 つの準位をすべて観測することに成功した (4.2.3 節)。この 4 つの準位の結果から予測を立て直し (4.2.4 節)、更に作製した光源の injection locking を行って STIRAP の遷移効率を上げることで (4.2.5 節)、 $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$ の 4 つと $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2)$ の 2 つを観測することができた (4.2.6, 4.2.7 節)。

分子準位の探索で得た結果により、 $X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0) - a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 1)$ 間の遷移周波数 $\Omega \cong 634.9\text{MHz}$, 結果に対してのフィッティングから μ の変化の割合に対する Ω の絶対的な変化 (感度) $\partial_\mu\Omega \cong 9485\text{GHz}$, 相対変化率 (増幅率) $\partial_\mu\Omega/\Omega \cong 14938$ と求めることができた (4.3 節)。この値を以前求められた $X^1\Sigma^+, v = 91 - a^3\Sigma^+, v = 22$ 間のものと比べると、 $\partial_\mu\Omega$ は 3 倍程度、 $\partial_\mu\Omega/\Omega$ は 10 倍ほど大きくなっていることがわかる (表 5.1)。これにより $X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0) - a^3\Sigma^+(v =$

16, $F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 1$) 間が μ の変化検出により優れていることが確かめられた。更に我々はこの準位間のマイクロ波遷移に成功し(4.4節)、 $X^1\Sigma^+, v = 86$ と $a^3\Sigma^+, v = 16$ の mixing が十分であることを確認した。また、マイクロ波遷移の結果から遷移の中心周波数の値が2次のゼーマン効果により磁場に依存して変わってしまうことがわかった。

以下の表 5.1 には比較のため、 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ の $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ 間について本研究で得られた結果と、 $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ の $X^1\Sigma^+, v = 91 - a^3\Sigma^+, v = 22$ 間について我々の研究室の先行研究の結果、および SF_6 分子の分光による結果 [16] を並べて示した。

表 5.1 本研究で得られた $^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ の $X^1\Sigma^+, v = 86 - a^3\Sigma^+, v = 16$ 間の感度・増幅率と先行研究 ($^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ の $X^1\Sigma^+, v = 91 - a^3\Sigma^+, v = 22$ 間および SF_6 の分光 [16]) との比較

	周波数 [MHz]	感度 [THz]	増幅率
$^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ (86 - 16)	634.9 (microwave)	9.485	14938
$^{41}\text{K}^{87}\text{Rb}$ (91 - 22)	2441 (microwave)	3.534	1448
SF_6 ([16])	28412764 (optical)	14.206	$\frac{1}{2}$

上記の SF_6 分子の分光実験では、 μ の変化を調べるのに SF_6 の光学遷移で測っており、増幅率は $1/2$ である。そのため高い周波数精度が必要となり、Cs fountain を基準周波数として使っている。この結果は $\Delta\Omega/\Omega = 2.8 \times 10^{-14}$ であり、従って $\Delta\mu/\mu = 2(\Delta\Omega/\Omega) = 5.6 \times 10^{-14}$ と現在最も精度の高い μ の測定となっている [16]。この実験と比べると我々の系は、 μ の変化をマイクロ波で測るために、感度は同程度でも 10^4 倍以上の高い増幅率が得られている。このことにより [16] と同程度の精度で $\Delta\mu/\mu$ (14 桁) を得ようとするとき、 $\text{KRb}, v = 86 - v = 16$ の系では $\Delta\Omega/\Omega = 1.5 \times 10^4 \times (\Delta\mu/\mu) \sim 10^{-10}$ となり、基準周波数の精度が低くてすむ。これは市販の周波数標準器 (精度 $\approx 5 \times 10^{-11}$) でも可能であり、本研究によって [16] 以上の精度で μ を測る実験系をより簡単に構築できることが示された。

本研究の今後の展望としては、実際に $X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 0) - a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2, F = 1)$ 間の周波数を測定する系を作って μ の変化を検証することが考えられる。例えば $\Delta\mu/\mu = 10^{-14}$ を目標とすると、 $\Delta\Omega/\Omega = 1.5 \times 10^4 \times (\Delta\mu/\mu) = 1.5 \times 10^{-10}$ 、 $\Delta\Omega = 1.5 \times 10^{-10} \times 634.9 \times 10^6 \approx 95\text{mHz}$ となり、周波数は数十 mHz のオーダーまで測る必要がある。更に、マイクロ波遷移の実験でわかったように、中心周波数は磁場 B によってずれてしまうため、磁場を均一かつ一定値に制御しなければならない。 $m_F = 0$ のずれは2

次のゼーマン効果 $\Omega(B) = \Omega(0) + cB^2$ で表され磁場に比較的鈍感であるが、 $m_F = \pm 1$ は 1 次で磁場に敏感である。そのため $m_F = 0$ の信号が周波数の正確な測定に使いやすい。しかし $B = 0$ とすると $m_F = 0$ の信号に $m_F = \pm 1$ のものが重なって信号が広がり、精度が落ちる ($F = 0 - F' = 0$ 間を使えばこれを防ぐことができるように思われるが、この間の遷移は禁制遷移である)。 $m_F = \pm 1$ の信号を $m_F = 0$ の信号の線幅 $\sim 2\text{kHz}$ より十分に分離するにはある程度磁場をかければよい。例えば $m_F = \pm 1$ の信号を $m_F = 0$ から 10kHz 離すとすると、1 次のゼーマン効果の係数 $\sim 0.4\text{MHz/G}$ として $B = 10 \times 10^3 / (0.4 \times 10^6) = 25\text{mG}$ であり、この磁場が一定になるように制御する。 B が 25mG から ΔB だけ揺らいだとすると、これによる $m_F = 0$ の信号のずれは $\Delta\Omega(B) \cong 2cB\Delta B$ だから、 c の典型的な値 $\sim 10\text{kHz/G}^2$ としたとき $\Delta B \cong 0.095 / (2 \times 10^4 \times 25 \times 10^{-3}) = 0.19\text{mG}$ 以下で磁場を制御する必要がある。このずれによる 1 次のずれは $0.4 \times 10^6 \times \Delta B \cong 76\text{Hz}$ だから、 $m_F = \pm 1$ の信号を見れば磁場のずれがわかる。条件をまとめると、

- 周波数を 10 桁の精度、10 mHz オーダーで測定できる
- $m_F = 0$ と ± 1 の信号を分離する磁場の大きさを、0.2 mG 以下の精度で一定に保つことができる

系を用意すれば、 $\Delta\mu/\mu = 10^{-14}$ の測定が可能になると考えられる。より正確には以上で仮定した c などの値の計算および実測や、この他の原因によって周波数がずれる効果の議論も必要になるだろう (付録で分光の結果からゼーマン分裂の係数を求めた)。

付録 A

EOM 用の共振回路

3.2 節の PDH 法では、EOM に RF をかけてレーザー光の中心周波数の周りにサイドバンドを持たせることで、ULE cavity からの反射信号の微分を得ている。我々は先行研究 [36][18][32] に倣って図 A.1 のような共振回路を作製し、RF を増幅して光の変調を効率よくできるようにした。

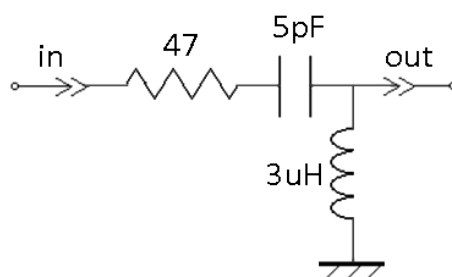


図 A.1 EOM 用共振回路の回路図

この共振回路をファンクションジェネレータと EOM に接続したときの実際の回路は図 A.2 のようになる。EOM の結晶は、BNC ケーブルなどの持つ容量も合わせると 20 - 30 pF 程度の電気容量を持っている。回路定数を図 A.2 のようにおくと、この回路全体のインピーダンスは

$$\begin{aligned}
 Z &= R + \frac{1}{j\omega C_1} + \left(\frac{1}{j\omega L} + j\omega C_2 \right)^{-1} \\
 &= R + j \left(\frac{\omega L}{1 - \omega^2 LC_2} - \frac{1}{\omega C_1} \right)
 \end{aligned} \tag{A.1}$$

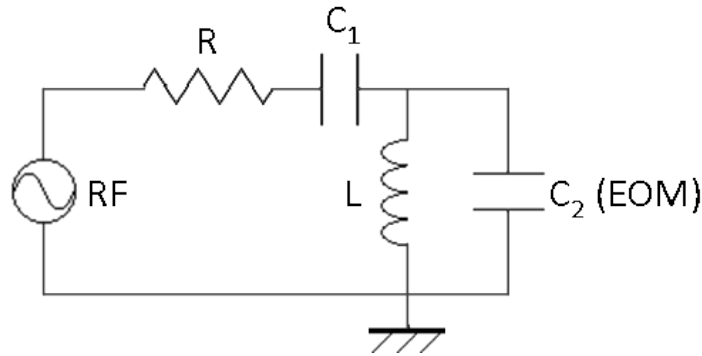


図 A.2 EOM 周辺の実際の回路

となる。よって、共振周波数は式 A.1 の虚部を 0 として

$$\frac{\omega L}{1 - \omega^2 LC_2} = \frac{1}{\omega C_1} \quad (\text{A.2})$$

$$\therefore \omega_0 = \frac{1}{\sqrt{L(C_1 + C_2)}} \quad (\text{A.3})$$

で与えられる。RF の電圧 V_i と EOM にかかる電圧 V_o の比 $A(\omega) \equiv V_o/V_i$ は

$$A(\omega) = \frac{j\omega L}{1 - \omega^2 LC_2} \quad (\text{A.4})$$

だから、回路の Q 値は A.1-A.3 を用いて

$$Q = |A(\omega_0)| = \frac{1}{\omega_0 C_1 R} = \frac{\sqrt{L(C_1 + C_2)}}{C_1 R} \quad (\text{A.5})$$

となる。

この回路の共振周波数は、図 A.3 のような EOM を通った光のサイドバンドが最も強く出るときの RF の周波数として $\omega_0 \approx 2\pi \times 16.42\text{MHz}$ であった。これより C_2 と Q 値を計算すると $C_2 \approx 26\text{pF}$, $Q \approx 41$ と求まる。実際に測定した周波数特性 (図 A.4) の (中心周波数)/(半値全幅) として求めた Q 値は 35 程度であった。Q 値が計算より少し小さくなったのは回路中でのエネルギーロスによるものと考えられる。特にコイルでのロスの大きさがコイルの材質や形状に依存しており、コイルを色々と付け替えると Q 値も変化するのが確認された。先行研究 [18] でも述べられているように、高い Q 値を得るにはコイルを適切に選ぶ必要がある。

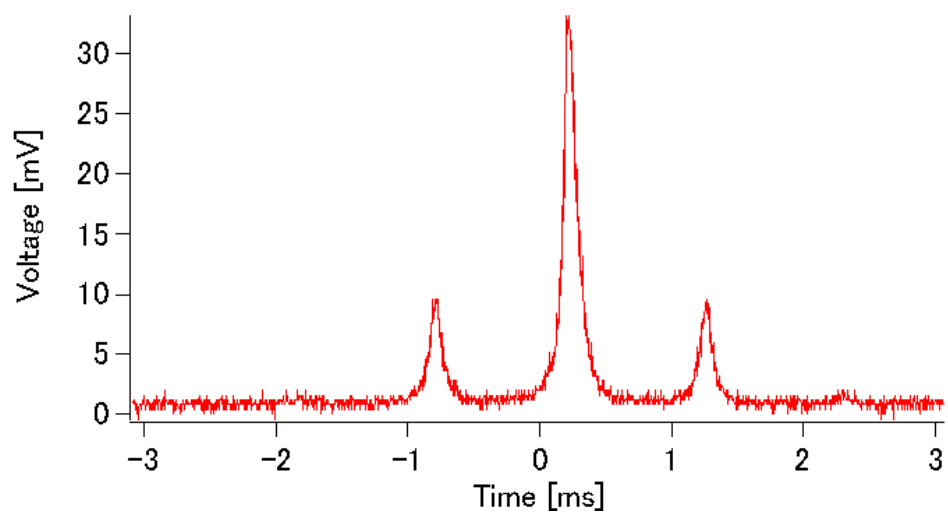


図 A.3 EOM によるサイドバンド。ECLD の PZT 素子を三角波で振りながら、EOM を通した光を PD が付属している cavity に入れ、その信号をオシロスコープで見た。

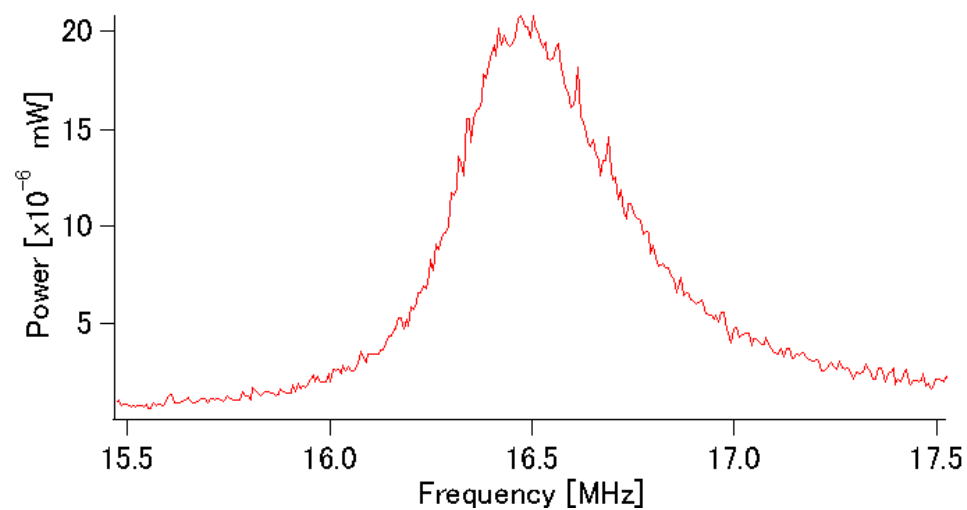


図 A.4 EOM 共振回路の周波数特性。周波数ごとに図 A.2 の回路から漏れる RF を別のコイルで検出し、そのパワーをスペクトラムアナライザで見た。

付録 B

高速フォトダイオード

図 3.2.1 の系で用いたフォトダイオードの回路は以下の図 B.1 のようになっている。高速応答の PD 素子 (浜松ホトニクス, S5971) からの電流を初段のオペアンプで電圧信号に変換して DC 出力と AC 出力を取り出すことができ、帯域は 15 MHz 程度である [18]。なお、この回路では低周波の電流に対し初段のオペアンプ後の電圧は負の値になるので、DC 出力をオシロスコープでモニターしたとき電圧値が小さいほど光強度が大きくなっているということに注意が必要である。

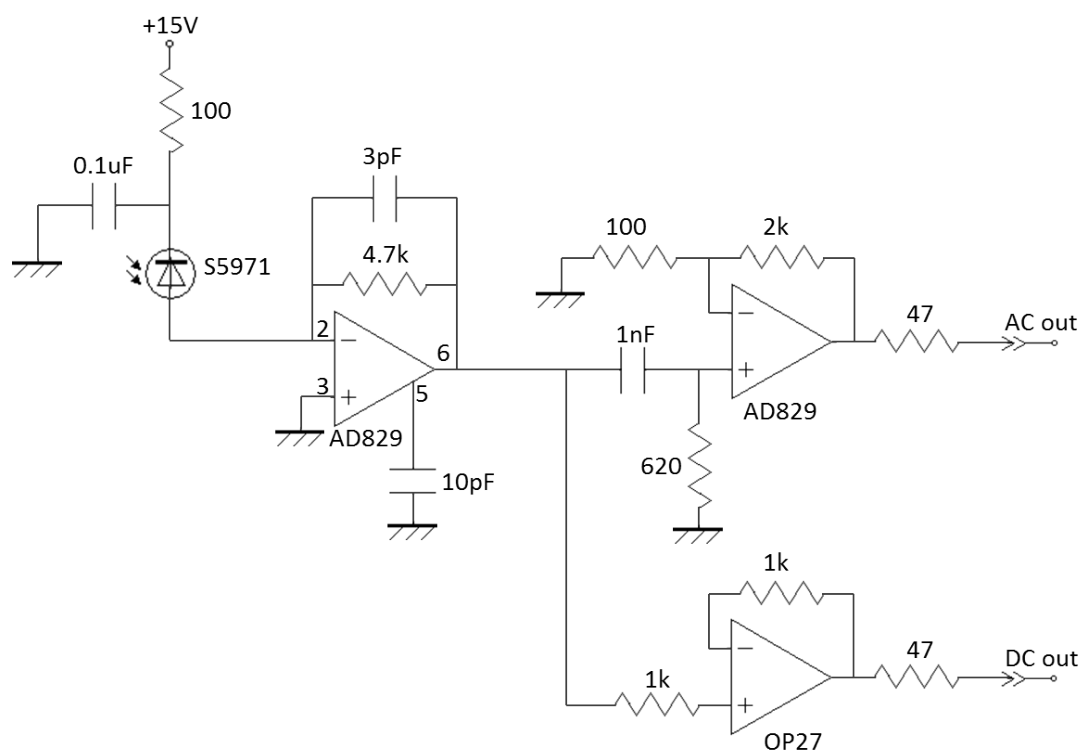


図 B.1 高速フォトダイオードの回路図。[36] を基に作製。

付録 C

singlet component および 2 次のゼーマン効果の計算

singlet component および 2 次のゼーマン効果を計算するために用いた mathematica のソースコードを末尾にのせる。FCF3.dat は各準位間の Franck-Condon Factor が表になっているファイルで E16.dat,E86.dat にはそれぞれ Triplet,Singlet の各振動準位のエネルギーが書いてある。最終的に 2ndZeeman.dat に磁場の大きさとその磁場のときエネルギー準位がどれだけ動いたかの表が出力される。これによって本研究で探索した $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ 、 $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の hyperfine level の singlet component と 2 次のゼーマン効果によるエネルギー準位の変化を計算した。図 C.2 は $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0, F = 0)$ の 2 次のゼーマン効果によるエネルギー変化を計算したものである。fitting は $f(x) = Ax^2$ でおこなっている。その他の準位も同様に磁場の 2 乗に比例しており、fitting の係数 A をまとめたものが表 C.1 である。この係数より、マイクロ波遷移の実験において Blank2 が $0 \mu s$ のときのエネルギーシフトは 0.0017 MHz 程度のためこのときの磁場の値は 0.45 G 程度と計算できる。

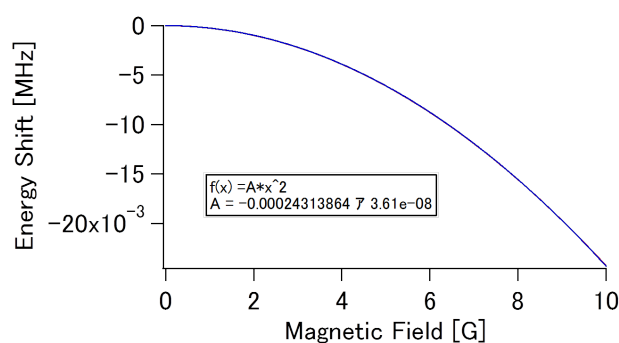


図 C.1 $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0, F = 0)$ の 2 次のゼーマン効果によるエネルギー変化

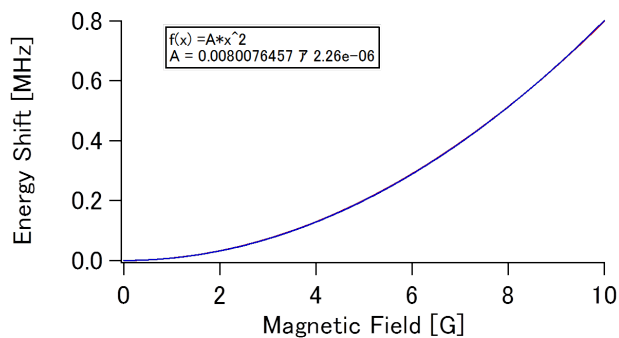


図 C.2 $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0, F_{Rb} = 1/2, F = 1)$ の 2 次のゼーマン効果によるエネルギー変化

表 C.1 fitting した係数

	F_{Rb}	F	A
Triplet	5/2	4	0.00685
		3	0.00868
		2	0.0106
		1	-0.0239
	3/2	3	0.00552
		2	0.00960
		1	0.0264
		0	-0.0405
	1/2	1	0.00801
		2	-0.0109
Singlet	3/2	3	-0.0000910
		2	-0.0000991
		1	-0.0000241
		0	-0.000243

計算に用いたコード

```

b = 3417.341; (*Hyperfine constant of Rb atom MHz*)
c = 127.006; (*Hyperfine constant of K atom MHz*)
g1 = -0.0009951414; (*nuclear magnetic moment of 87Rb atom*)
g2 = -0.000077906; (*nuclear magnetic moment of K atom*)
ge = 2; (*g-factor*)
myu = 1.4; (*Bohr magneton [MHz/G]*)
B1 = 0; (*magnetic field [G]*)
d1 = B1*ge*myu; (*Zeeman shift MHz*)
z11 = B1*g1*myu;
z21 = B1*g2*myu;
G = 200000; (*Energy offset*)
F1 = Import["FCF3.dat", "Table"]; (*振動準位間の FCF の表*)
EE16 = Import["E16.dat", "List"]; (*Triplet の各振動準位の励起状態からのエネルギー*)
EE86 = Import["E86.dat", "List"]; (*Singlet の各振動準位の励起状態からのエネルギー*)
E16 = 29979.2458*EE16[[All]];
E86 = 29979.2458*EE86[[All]];
E3 = Table[0, {33}];
TT1[j_] :=
  {{b/4 - (3*c)/4 + d1 + E16[[j]] + G + z11/2 - (3*z21)/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4, (Sqrt[6]*c)/4,
  0, 0, 0, 0, 0},
  {0, -(b/4) - c/4 + d1 + E16[[j]] + G - z11/2 - z21/2, 0, 0, (Sqrt[2]*b)/2, (Sqrt[2]*c)/2, 0,
  0, 0, 0},
  {0, 0, -(1/4)*(3*b) + c/4 + d1 + E16[[j]] + G - (3*z11)/2 + z21/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4,
  (Sqrt[6]*c)/4, 0, 0, 0},
  {(Sqrt[6]*b)/4, 0, 0, E16[[j]] + G + (3*z11)/2 - (3*z21)/2, 0, 0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, 0, 0},
  {(Sqrt[6]*c)/4, (Sqrt[2]*b)/2, 0, 0, E16[[j]] + G + z11/2 - z21/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4,
  (Sqrt[2]*c)/2, 0},
  {0, (Sqrt[2]*c)/2, (Sqrt[6]*b)/4, 0, 0, E16[[j]] + G - z11/2 + z21/2, 0, 0, (Sqrt[2]*b)/2,
  (Sqrt[6]*c)/4},
  {0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, 0, 0, 0, E16[[j]] + G - (3*z11)/2 + (3*z21)/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4},
  {0, 0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, (Sqrt[6]*b)/4, 0, 0,
  -(1/4)*(3*b) + c/4 - d1 + E16[[j]] + G + (3*z11)/2 - z21/2, 0, 0},
  {0, 0, 0, 0, (Sqrt[2]*c)/2, (Sqrt[2]*b)/2, 0, 0,
  -(b/4) - c/4 - d1 + E16[[j]] + G + z11/2 + z21/2, 0},
  {0, 0, 0, 0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, (Sqrt[6]*b)/4, 0, 0,
  b/4 - (3*c)/4 - d1 + E16[[j]] + G - z11/2 + (3*z21)/2}};
TS1[i_, j_] :=
  {{(1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*c* F1[[i, j]], 0, 0},
  {0, (1/2)*(-Sqrt[2])*b*F1[[i, j]], (1/2)*Sqrt[2]*c*F1[[i, j]], 0},
  {0, 0, (1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*c*F1[[i, j]]},
  {(3*b*F1[[i, j]])/(2*2) - ((3*c*F1[[i, j]])/(2*2)), 0, 0, 0},
  {0, (b*F1[[i, j]])/(2*2) - ((c*F1[[i, j]])/(2*2)), 0, 0},
  {0, 0, -(b*F1[[i, j]])/(2*2) - (c*F1[[i, j]])/(2*2), 0},
  {0, 0, 0, -((3*b*F1[[i, j]])/(2*2)) - (3*c*F1[[i, j]])/(2*2)},
  {(1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]], 0, 0},
  {0, (1/2)*(-Sqrt[2])*c*F1[[i, j]], (1/2)*Sqrt[2]*b*F1[[i, j]], 0},
  {0, 0, (1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]]}};
ST1[i_, j_] :=

```

```

{{(1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], 0, 0,
(3*b*F1[[i, j]]/(2*2) - ((3*c*F1[[i, j]]/(2*2))), 0, 0, 0,
(1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]], 0, 0},
{(1/4)*Sqrt[6]*c*F1[[i, j]], (1/2)*(-Sqrt[2])*b*F1[[i, j]], 0, 0,
(b*F1[[i, j]]/(2*2) - ((c*F1[[i, j]]/(2*2))), 0, 0,
(1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]], (1/2)*(-Sqrt[2])*c*F1[[i, j]], 0},
{0, (1/2)*Sqrt[2]*c*F1[[i, j]], (1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], 0, 0,
-((b*F1[[i, j]]/(2*2)) - (c*F1[[i, j]]/(2*2)), 0, 0, (1/2)*Sqrt[2]*b*F1[[i, j]],
(1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]]},
{0, 0, (1/4)*Sqrt[6]*c*F1[[i, j]], 0, 0, 0,
-((3*b*F1[[i, j]]/(2*2)) - (3*c*F1[[i, j]]/(2*2)), 0, 0, (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]]}};
SS1[i_] :=
{{E86[[i]] + G + (3*z11)/2 - (3*z21)/2, 0, 0, 0},
{0, E86[[i]] + G + z11/2 - z21/2, 0, 0},
{0, 0, E86[[i]] + G - z11/2 + z21/2, 0},
{0, 0, 0, E86[[i]] + G - (3*z11)/2 + (3*z21)/2}};
"準位間のエネルギー差の実験値"
E0 = {1.546, 3.554, 7.19, 537.918, 84.73, 2509.07, 16.282, 30.444, 41.072}
"hyperfineconstant b c"
b = 3383.0998;
c = 127.006;
Print["b=", b]
Print["c=", c]
"86-16 間のエネルギー、FCF"
E86[[87]] = E16[[17]] - 4725.8936;
E86[[87]] - E16[[17]]
F1[[87, 17]] = 0.151566
BB1 := ArrayFlatten[{{TT1[17], TS1[87, 17]}, {ST1[87, 17], SS1[87]}}];
BB5 = Eigenvalues[BB1];
BB6 = BB5[[All]] - G;
BB13 = BB6[[All]] - E16[[17]];
BB6[[All]]/29979.2458;
BB7 = Table[0, {13}];
For[i = 1, i <= 13, i = i + 1, BB7[[i]] = BB6[[i]] - BB6[[i + 1]]];
"準位間のエネルギー差"
BB8 = -BB7[[All]]
"実験値との差"
BB9 = BB8[[1 ;; 9]] - E0
Total[Abs[BB9]]
BB11 = Eigenvectors[BB1];
TC = Table[0, {14}];
SC = Table[1, {14}];
For[i = 1, i <= 14, i = i + 1,
  TC[[i]] = Sum[BB11[[i, j]]^2, {j, 1, 10}];
"Triplet component"
TC
"Singlet component"
SC = SC - TC
TT2[j_] :=
{{b/4 - (3*c)/4 + d2 + E16[[j]] + G + z12/2 - (3*z22)/2, 0, 0,

```

```

(Sqrt[6]*b)/4, (Sqrt[6]*c)/4, 0, 0, 0, 0, 0},
{0, -(b/4) - c/4 + d2 + E16[[j]] + G - z12/2 - z22/2, 0, 0, (Sqrt[2]*b)/2, (Sqrt[2]*c)/2,
0, 0, 0, 0},
{0, 0, -(1/4)*(3*b) + c/4 + d2 + E16[[j]] + G - (3*z12)/2 + z22/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4,
(Sqrt[6]*c)/4, 0, 0, 0},
{(Sqrt[6]*b)/4, 0, 0, E16[[j]] + G + (3*z12)/2 - (3*z22)/2, 0, 0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, 0, 0},
{(Sqrt[6]*c)/4, (Sqrt[2]*b)/2, 0, 0, E16[[j]] + G + z12/2 - z22/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4,
(Sqrt[2]*c)/2, 0},
{0, (Sqrt[2]*c)/2, (Sqrt[6]*b)/4, 0, 0, E16[[j]] + G - z12/2 + z22/2, 0, 0, (Sqrt[2]*b)/2,
(Sqrt[6]*c)/4},
{0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, 0, 0, 0, E16[[j]] + G - (3*z12)/2 + (3*z22)/2, 0, 0, (Sqrt[6]*b)/4},
{0, 0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, (Sqrt[6]*b)/4, 0, 0,
-(1/4)*(3*b) + c/4 - d2 + E16[[j]] + G + (3*z12)/2 - z22/2, 0, 0},
{0, 0, 0, 0, (Sqrt[2]*c)/2, (Sqrt[2]*b)/2, 0, 0,
-(b/4) - c/4 - d2 + E16[[j]] + G + z12/2 + z22/2, 0},
{0, 0, 0, 0, 0, (Sqrt[6]*c)/4, (Sqrt[6]*b)/4, 0, 0,
b/4 - (3*c)/4 - d2 + E16[[j]] + G - z12/2 + (3*z22)/2}};
TS2[i_, j_] :=
{{(1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*c* F1[[i, j]], 0, 0},
{0, (1/2)*(-Sqrt[2])*b*F1[[i, j]], (1/2)*Sqrt[2]*c*F1[[i, j]], 0},
{0, 0, (1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*c*F1[[i, j]]},
{(3*b*F1[[i, j]])/(2*2) - ((3*c*F1[[i, j]])/(2*2)), 0, 0, 0},
{0, (b*F1[[i, j]])/(2*2) - ((c*F1[[i, j]])/(2*2)), 0, 0},
{0, 0, -(b*F1[[i, j]])/(2*2) - (c*F1[[i, j]])/(2*2), 0},
{0, 0, 0, -((3*b*F1[[i, j]])/(2*2)) - (3*c*F1[[i, j]])/(2*2)},
{(1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]], 0, 0},
{0, (1/2)*(-Sqrt[2])*c*F1[[i, j]], (1/2)*Sqrt[2]*b*F1[[i, j]], 0},
{0, 0, (1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]], (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]]}};
ST2[i_, j_] :=
{{(1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], 0, 0, (3*b*F1[[i, j]])/(2*2) - ((3*c*F1[[i, j]])/(2*2)),
0, 0, 0, (1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]], 0, 0},
{(1/4)*Sqrt[6]*c*F1[[i, j]], (1/2)*(-Sqrt[2])*b*F1[[i, j]], 0, 0,
(b*F1[[i, j]])/(2*2) - ((c*F1[[i, j]])/(2*2)), 0, 0, (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]],
(1/2)*(-Sqrt[2])*c*F1[[i, j]], 0},
{0, (1/2)*Sqrt[2]*c*F1[[i, j]], (1/4)*(-Sqrt[6])*b*F1[[i, j]], 0, 0,
-(b*F1[[i, j]])/(2*2) - (c*F1[[i, j]])/(2*2), 0, 0, (1/2)*Sqrt[2]*b*F1[[i, j]],
(1/4)*(-Sqrt[6])*c*F1[[i, j]]},
{0, 0, (1/4)*Sqrt[6]*c*F1[[i, j]], 0, 0, 0,
-((3*b*F1[[i, j]])/(2*2)) - (3*c*F1[[i, j]])/(2*2), 0, 0, (1/4)*Sqrt[6]*b*F1[[i, j]]}};
SS2[i_] :=
{{E86[[i]] + G + (3*z12)/2 - (3*z22)/2, 0, 0, 0},
{0, E86[[i]] + G + z12/2 - z22/2, 0, 0},
{0, 0, E86[[i]] + G - z12/2 + z22/2, 0},
{0, 0, 0, E86[[i]] + G - (3*z12)/2 + (3*z22)/2}};
DD3 = ConstantArray[0, {14, 101}];
DD5 = Table[0, {101}];
For[k = 1, k <= 101, k = k + 1, B2 = 0.1*(k - 1); DD5[[k]] = B2;
d2 = B2*ge*myu;
z12 = B2*g1*myu; z22 = B2*g2*myu;
CC1 := ArrayFlatten[{{TT2[17], TS2[87, 17]}, {ST2[87, 17], SS2[87]}}];

```

```

CC5 = Eigenvalues[CC1]; CC6 = CC5[[A11]] - G;
CC13 = CC6[[A11]] - E16[[17]];
CC6[[A11]]/29979.2458; CC7 = Table[0, {13}];
For[i = 1, i <= 13, i = i + 1,
  CC7[[i]] = CC6[[i]] - CC6[[i + 1]];
CC8 = -CC7[[A11]];
CC9 = CC8[[1 ;; 9]] - E0;
DD1 = Table[0, {14}];
For[i = 1, i <= 14, i = i + 1,
  DD1[[i]] = -BB13[[i]] + CC13[[i]];
DD2 = 10^6*DD1;
For[i = 1, i <= 14, i = i + 1, DD3[[i]][[k]] = DD2[[i]];
];
"2ndZeeman"
For[i = 1, i <= 14, i = i + 1, Print["offset=", BB13[[14 - i + 1]]];
Print[ListPlot[DD3[[i]]]; ]
DD6 = Join[{DD5}, DD3];
DD4 = Transpose[DD6];
Export["2ndZeeman.dat", DD4]

```


付録 D

Hyperfine 準位の磁場依存性の計算

2.2 節で求めた $X^1\Sigma^+(v = 86, J = 0)$ と $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ の hyperfine structure は、磁場をかけるとゼーマン効果によって更に細かい磁気副準位に分かれる。ここでは分光による fitting の結果を使い、hyperfine 準位の磁場依存性を計算する。

z 軸方向に磁場 B があるときのハミルトニアンは、式 2.2.1 の \mathcal{H}_0 にゼーマン効果の項

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} = g_{\text{Rb}}\mu_{\text{B}}BI_{\text{Rb}}^z + g_{\text{K}}\mu_{\text{B}}BI_{\text{K}}^z + g_e\mu_{\text{B}}B(S_{\text{Rb}}^z + S_{\text{K}}^z) \quad (\text{D.1})$$

を加えたものである。ただし $g_{\text{Rb}}, g_{\text{K}}, g_e$ はそれぞれ Rb 原子核, K 原子核, 電子の g 因子、 μ_{B} はボーア磁子であり、角運動量の右肩につけた z はその z 成分であることを表す。2.2 節では $m_F = m_S + m_{\text{Rb}} + m_{\text{K}} = 0$ のみを考えたが、 $m_F \neq 0$ についても同様にハミルトニアン $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}$ を行列表示し固有値を計算することで磁気副準位のエネルギーを求めることができる。すべての準位について、磁場を 0 から 10 G まで変化させたときのエネルギーの変化を図 D.1-D.4 に示す (Hyperfine 分裂する前の $a^3\Sigma^+(v = 16, J = 0)$ をエネルギーの原点にとっている)。

これらの図の各曲線を、磁場の二次の効果まで考えて $a_0 + a_1B + a_2B^2$ の形で fitting した値を表 D.1-D.4 に記した。ただし $m_F = 0$ の各準位については付録 C で与えられているのでここには示さない。図と表より、 $X^1\Sigma^+, v = 86$ から分裂した準位は $a^3\Sigma^+, v = 16$ から分裂した準位に比べてゼーマン効果によるエネルギー分裂が小さい。このことから STIRAP の実験において前者ではゼーマン分裂が見えなかったことが説明できる。また、図 4.2.16 のように $a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2, F = 1)$ では非対称な分裂が見られたが、計算結果にもその非対称性が現れている (図 D.2)。

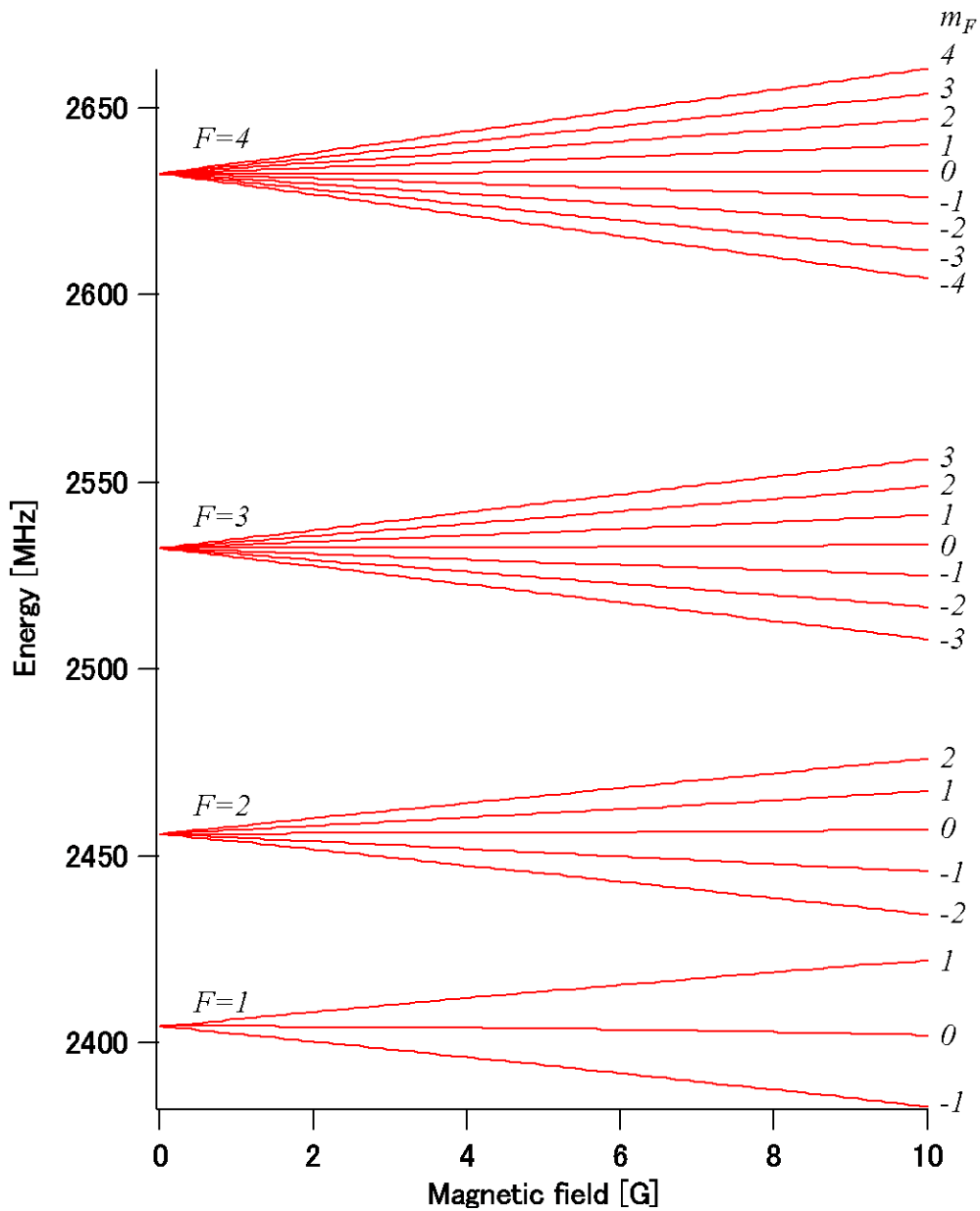


図 D.1 Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($a^3\Sigma^+(v=16, F_{\text{Rb}}=5/2, F=4, 3, 2, 1)$)

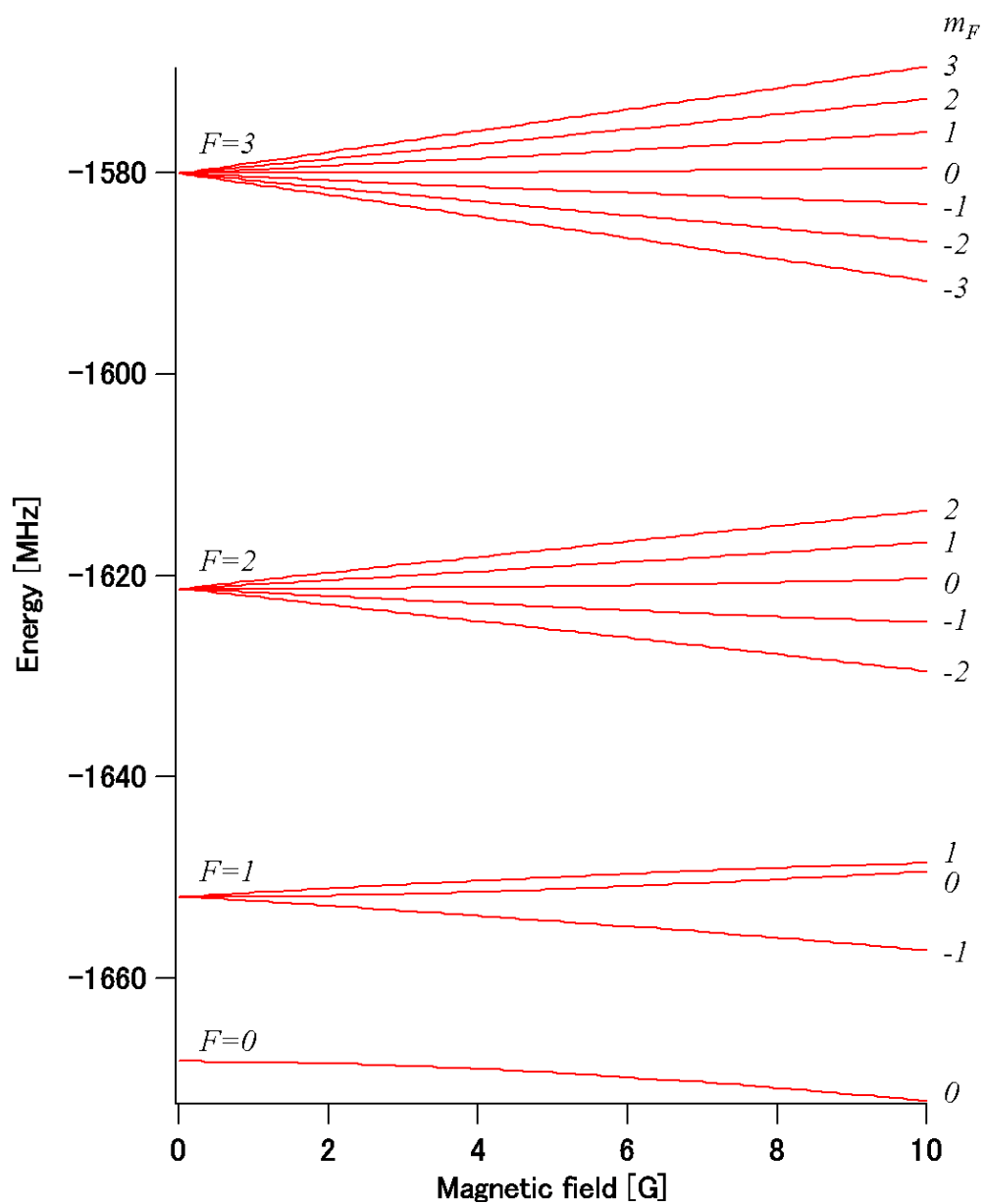


図 D.2 Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($a^3\Sigma^+(v=16, F_{Rb}=3/2, F=3, 2, 1, 0)$)

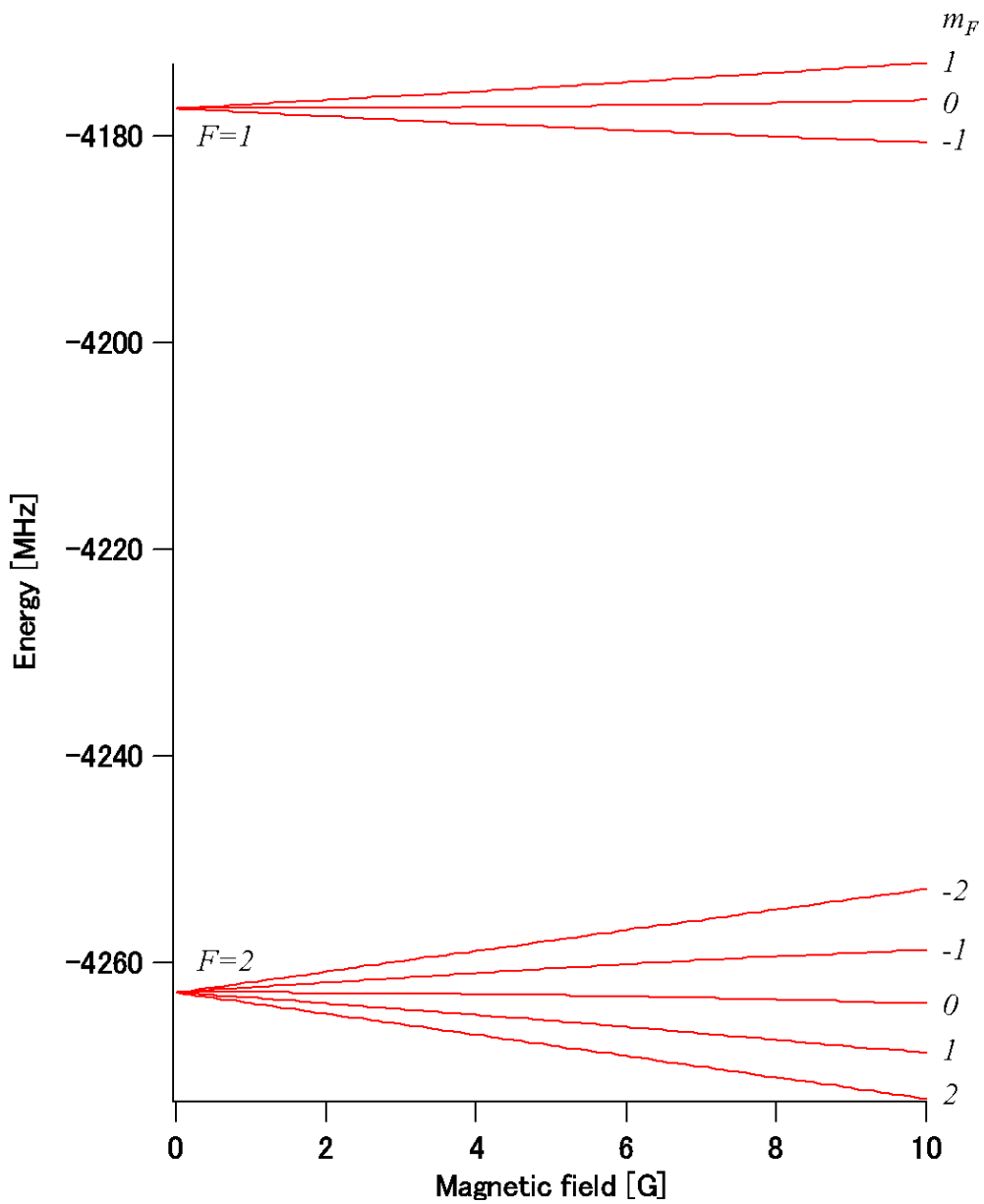


図 D.3 Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($a^3\Sigma^+(v=16, F_{\text{Rb}}=1/2, F=1, 2)$)

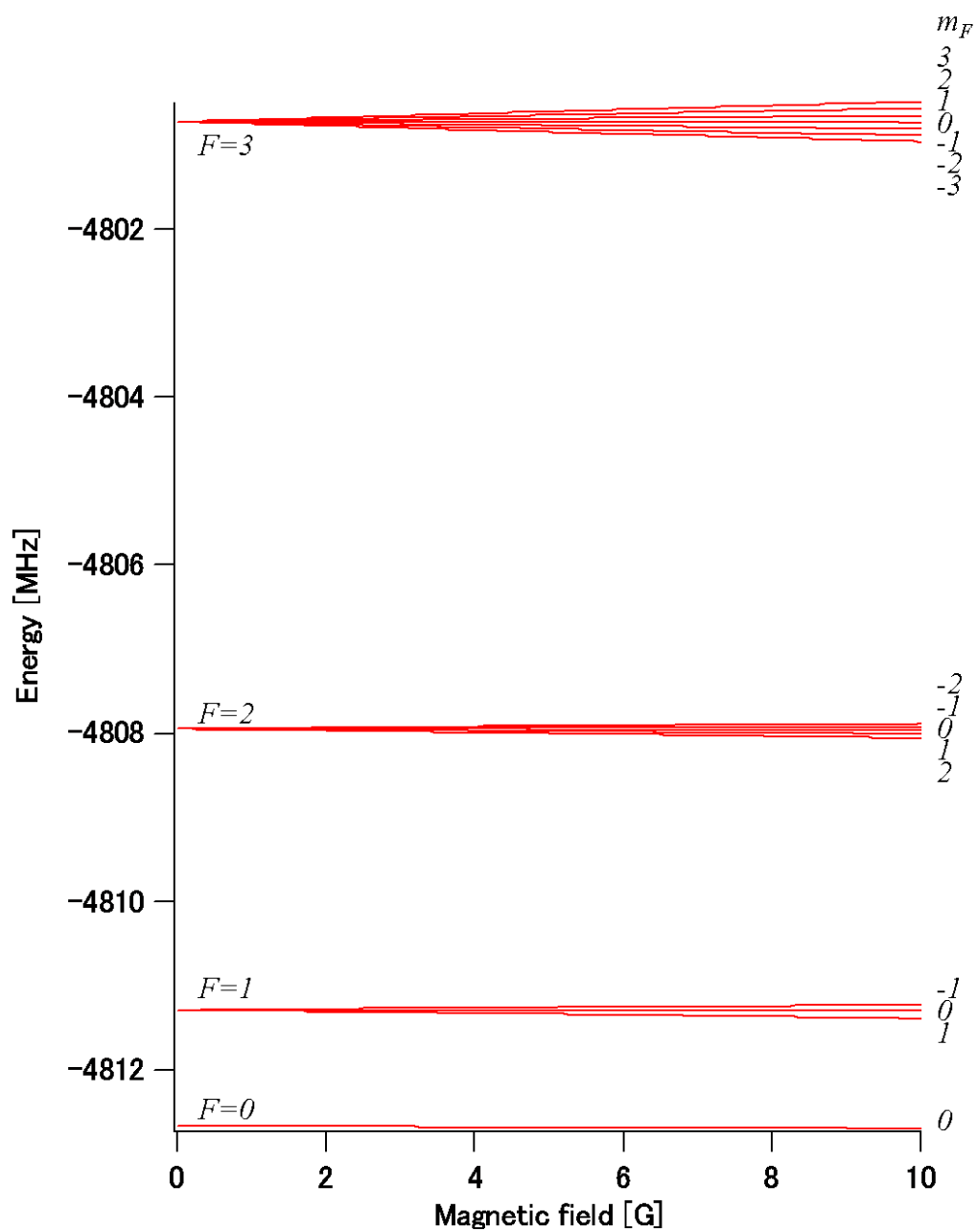


図 D.4 Hyperfine 準位のゼーマン分裂 ($X^1\Sigma^+(v=86, F_{\text{Rb}}=3/2, F=3, 2, 1, 0)$)

表 D.1 図 D.1 をフィッティングして求めた係数

$\alpha^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 5/2)$		a_0 [MHz]	a_1 [MHz/G]	a_2 [kHz/G ²]
$F = 4$	$m_F = 4$	2632.6	2.7977	0
	$m_F = 3$		2.0980	3.0805
	$m_F = 2$		1.3985	5.2380
	$m_F = 1$		0.69919	6.4880
	$m_F = -1$		-0.69915	6.3551
	$m_F = -2$		-1.3984	5.0263
	$m_F = -3$		-2.0979	2.8971
	$m_F = -4$		-2.7977	0
$F = 3$	$m_F = 3$	2532.4	2.4092	-2.6396
	$m_F = 2$		1.6040	4.2099
	$m_F = 1$		0.80121	7.8966
	$m_F = -1$		-0.80087	6.9348
	$m_F = -2$		-1.6035	3.1022
	$m_F = -3$		-2.4093	-2.4542
$F = 2$	$m_F = 2$	2456.1	2.0904	-8.3328
	$m_F = 1$		1.0265	10.897
	$m_F = -1$		-1.0293	2.5371
	$m_F = -2$		-2.0909	-7.0110
$F = 1$	$m_F = 1$	2404.5	2.0016	-23.483
	$m_F = -1$		-1.9992	-14.030

表 D.2 図 D.2 をフィッティングして求めた値

$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 3/2)$		$a_0[\text{MHz}]$	$a_1[\text{MHz/G}]$	$a_2[\text{kHz/G}^2]$
$F = 3$	$m_F = 3$	-1580.1	1.0614	-0.42642
	$m_F = 2$		0.70806	2.7673
	$m_F = 1$		0.35411	4.7793
	$m_F = -1$		-0.35399	4.9059
	$m_F = -2$		-0.70777	2.9245
	$m_F = -3$		-1.0614	-0.42816
$F = 2$	$m_F = 2$	-1621.3	0.79489	-2.3262
	$m_F = 1$		0.40015	6.0262
	$m_F = -1$		-0.39587	6.2075
	$m_F = -2$		-0.79519	-2.4611
$F = 1$	$m_F = 1$	-1651.9	0.42982	-9.2694
	$m_F = -1$		-0.43422	-9.5767

表 D.3 図 D.3 をフィッティングして求めた係数

$a^3\Sigma^+(v = 16, F_{\text{Rb}} = 1/2)$		$a_0[\text{MHz}]$	$a_1[\text{MHz/G}]$	$a_2[\text{kHz/G}^2]$
$F = 1$	$m_F = 1$	-4177.3	0.39528	4.5149
	$m_F = -1$		-0.39559	6.7672
$F = 2$	$m_F = -2$	-4262.8	1.0138	-1.3197
	$m_F = -1$		0.51145	-9.7023
	$m_F = 1$		-0.51114	-7.4422
	$m_F = 2$		-1.0138	-1.2809

表 D.4 図 D.4 をフィッティングして求めた係数

$X^1\Sigma^+(v = 86, F_{\text{Rb}} = 3/2)$		$a_0[\text{MHz}]$	$a_1[\text{MHz/G}]$	$a_2[\text{kHz/G}^2]$
$F = 3$	$m_F = 3$	-4800.7	0.023876	-0.014559
	$m_F = 2$		0.015900	-0.048179
	$m_F = 1$		0.0079446	-0.071811
	$m_F = -1$		-0.0079452	-0.078855
	$m_F = -2$		-0.015900	-0.056997
	$m_F = -3$		-0.023876	-0.014795
$F = 2$	$m_F = -2$	-4807.9	0.0085213	-0.20478
	$m_F = -1$		0.0042828	-0.11939
	$m_F = 1$		-0.0042755	-0.12088
	$m_F = 2$		-0.0085185	-0.22711
$F = 1$	$m_F = -1$	-4811.3	0.0079730	-0.20408
	$m_F = 1$		-0.0079768	-0.21517

謝辞

本論文は東京大学工学部物理工学科における卒業研究をまとめたものです。本研究を行うにあたり、多くの方々に助言・助力をいただきましたことに心より感謝申し上げます。

指導教員である井上慎准教授には、実験に関するだけでなく、グループで研究をしていることの重要性や、研究発表の仕方等様々な事柄について指導していただきました。毎週のミーティングや実験室での雑談における、先生の物理に対する説明は非常にわかりやすく物理への深い理解と熱意を感じました。

小林淳助教には、実験の面倒を何から何まで見ていただき、毎週の4年生のミーティングを行っていただいたり、実験に参考になる論文を紹介していただいたりと、非常にお世話になりました。我々が実験においてノイズなどで困っていたとき、小林助教のアドバイスで解決するということが幾度となくありました。

博士課程2年の加藤宏平氏は、熱心に実験に向かう姿が先輩として非常に尊敬でき、研究室に入ったばかりで何もわからない我々の面倒をよく見ていただきました。質問に対しても親切にこたえていただき、とても感謝しています。

修士課程2年の上原城児氏は、実験室において隣のテーブルで実験を行っていたこともあり、夜遅くまで実験をしているなど熱心に実験をする姿をよく目にしました。雨の中会話をしながら帰るなど、しばしば雑談に花を咲かせることもありました。

修士課程1年の長田有登氏は研究に対してとてもひたむきで、その意識の高さには大きな刺激を受けました。我々にも気さくに接していただき、実験において多くのアドバイスをもらったり、回路作りにおいて氏の作った回路を参考にさせて頂いたりとお世話になりました。

学部4年の鈴木皓博氏は椅子を並べて回路作りをすることが多々ありました。熱心に回路を作る姿や上原氏と議論をしながら実験を行う姿が印象に残っています。

その他、論文紹介等研究活動を支えて頂いた多くの方々に、改めてお礼申し上げます。

参考文献

- [1] C. J. Foot, *Atomic Physics*, Oxford, 2005
- [2] M.H. Anderson, J.R. Ensher, M.R. Matthews, C.E. Wieman, and E.A. Cornell, Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor, *Science* **269**, 198-201 (1995)
- [3] K.B. Davis, M.-O. Mewes, M.R. Andrews, N.J. van Druten, D.S. Durfee, D.M. Kurn and W. Ketterle, Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3969-3973 (1995)
- [4] C. A. Regal, M. Greiner, D. S. Jin, Observation of Resonance Condensation of Fermionic Atom Pairs, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 040403 (2004)
- [5] M. Greiner, O. Mandel, T. Esslinger, T.W. Hansch, and I. Bloch, Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms, *Nature* **415**, 39-44 (2002)
- [6] S. Inouye, M.R. Andrews, J. Stenger, H.-J. Miesner, D.M. Stamper-Kurn, and W. Ketterle, Observation of Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate, *Nature* **392**, 151-154 (1998)
- [7] Masao Takamoto, Feng-Lei Hong, Ryoichi Higashi, and Hidetoshi Katori, An optical lattice clock, *Nature* **435**, 321-324 (2005)
- [8] D.DeMille, Quantum Computation with Trapped Polar Molecules, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067901 (2002)
- [9] John M.Doyle, Bretislav Friedrich, Jinha Kim, and David Patterson, Buffer-gas loading of atoms and molecules into a magnetic trap, *Phys. Rev. A*, **52**, 2515-2518, (1995)
- [10] Thorsten Köhler, Krzysztof Góral, and Paul S. Julienne. Production of cold molecules via magnetically tunable Feshbach resonances. *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1311-1361, (2006)
- [11] Kevin M.Jones, Eite Tiesinga, Paul D.Lett, and Paul S.Julienne, Ultracold photoassociation spectroscopy:Long-range molecules and atomic scattering, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 483-535 (2006)

- [12] K. Bergmann, H. Theuer, and B.W. Shore, Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1003-1025 (1998)
- [13] K.-K. Ni, S. Ospelkaus, M. H. G. de Miranda, A. Pe'er, B. Neyenhuis, J. J. Zirbel, S. Kotochigova, P. S. Julienne, D. S. Jin, J. Ye, A High Phase-Space-Density Gas of Polar Molecules, *Science*, **322**, 231 (2008)
- [14] L.L. Cowie and A. Songaila, Astrophysical Limits on the Evolution of Dimensionless-Physical Constants over Cosmological Time, *Astrophys. J.* **453** (1995) 596
- [15] John D. Prestage, Robert L. Tjoelker, and Lute Maleki, Atomic Clocks and Variations of the Fine structure Constant, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3511 (1995)
- [16] A. Shelkvnikov, R.J. Butcher, C. Chardonnet, and A. Amy-Klein, Stability of the Proton-to-Electron Mass Ratio, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 150801 (2008)
- [17] D. DeMille, S. Sainis, J. Sage, T. Bergeman, S. Kotochigova, and E. Tiesinga, Enhanced Sensitivity to Variation of m_e/m_p in Molecular Spectra, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 043202 (2008)
- [18] 相川 清隆 博士論文 "All-optical selective formation of ultracold molecules in the rovibrational ground state", 東京大学 (2011)
- [19] L. I. Schiff 著, 井上 健 訳, 新版 量子力学 (上), 吉岡書店, 1970
- [20] L. I. Schiff 著, 井上 健 訳, 新版 量子力学 (下), 吉岡書店, 1972
- [21] D. A. McQuarrie · J. D. Simon 著, 千原 秀昭 · 江口 太郎 · 齋藤 一弥 訳, 物理化学 (上)—分子論的アプローチ—, 東京化学同人, 1999
- [22] 岡崎 誠, 物質の量子力学 岩波基礎物理シリーズ 6, 岩波書店, 1995
- [23] 高柳 和夫, 朝倉物理学大系 11 原子分子物理学, 朝倉書店, 2000
- [24] G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure I. Spectra of Diatomic Molecules*, D. van Nostrand, (1950)
- [25] 大麻 浩平 修士論文 「極低温極性分子の超微細構造に関する研究」, 東京大学, (2011)
- [26] A. Pashov, O. Docenko, M. Tamanis, R. Ferber, H. Knöckel, and E. Tiemann, Coupling of the $X^1\Sigma^+$ and $a^3\Sigma^+$ states of KRb, *Phys. Rev. A* **76**, 022511 (2007)
- [27] K. Aikawa, D. Akamatsu, M. Hayashi, J. Kobayashi, M. Ueda, and S. Inouye, Predicting and verifying transition strengths from weakly bound molecules, *Phys. Rev. A* **83**, 042706 (2011)
- [28] Charles E. Hamilton, James L. Kinsey, and Robert W. Field, STIMULATED EMISSION PUMPING: New Methods in Spectroscopy and Molecular Dynamics, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **37**, 493-524 (1986)
- [29] L. P. Yatsenko and V. I. Romanenko, and B. W. Shore and K. Bergmann, Stimulated Raman adiabatic passage with partially coherent laser fields, *Phys. Rev. A* **65**, 043409

- (2002)
- [30] R. J. Le Roy, *LEVEL 8.0: A Computer Program for Solving the Radial Schrödinger Equation for Bound and Quasibound Levels*, University of Waterloo Chemical Physics Research Report CP-663 (2007); see <http://leroy.uwaterloo.ca/programs/>
- [31] J. W. Cooley, An Improved Eigenvalue Corrector Formula for Solving the Schrödinger Equation for Central Fields, *Math. Comp.* **15**, 363-374 (1961)
- [32] 長田 有登 卒業論文「フェッシュバッハ分子の誘導ラマン断熱遷移による振動回転基底状態への遷移のための光源開発」, 東京大学 (2012)
- [33] Eric D. Black, An introduction to Pound-Drever-Hall laser frequency stabilization, *Am. J. Phys.* **69**, 79 (2001)
- [34] D. M. Brink and G. R. Satchler, *Angular Momentum* (Oxford, 1962)
- [35] 相川 清隆 修士論文 "Preparation of ultracold atomic sources towards ground state polar molecules", 東京大学, (2008)
- [36] 斉藤 祐介、福岡 健太 卒業論文 「混合ボース気体の共振器増幅光トラップに向けた単一モード DPSS レーザーの開発」, 東京大学, (2010)
- [37] Julija Bagdonaite, Paul Janesen, Christian Henkel, Hendrick L. Bethlem, Karl M. Menten, Wim Ubachs, A Stringent Limit on a Drifting Proton-to-Electron Mass Ratio from Alcohol in the Early Universe, *Science* **339**, 46 (2013)
- [38] W. Petrich, M. Anderson, J. Ensher, and E. Cornell. Behavior of atoms in a compressed magneto-optical trap. *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 1332 (1994)
- [39] M. J. Lawrence, B. Willke, M. E. Husman, E. K. Gustafson, and R. L. Byer, Dynamic response of a Fabry-Perot interferometer, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 4, 523 (1999)