

博士論文

パラフィンコーティングセルにおける  
アルカリ金属原子の散乱

東京農工大学 工学府  
電子情報工学専攻 物理応用工学専修

関口 直太

指導教員：畠山温 教授



# 目次

<b>第 1 章</b>	<b>序論</b>	1
1.1	アルカリ金属原子	1
1.2	光ポンピングとスピン偏極	3
1.3	スピン緩和	6
1.3.1	緩衝ガスによるスピン緩和防止	7
1.3.2	スピン緩和防止コーティングによるスピン緩和防止	7
1.4	スピン緩和防止コーティング	8
1.4.1	スピン緩和防止コーティングの利点と応用	8
1.4.2	アルカリ金属原子とスピン緩和防止コーティングとの相互作用	8
1.5	緩和防止コーティングを施したガラスセル内のアルカリ金属原子の運動	10
1.6	本研究の目的と結果	11
<b>第 2 章</b>	<b>壁面での散乱：パラフィン表面でのアルカリ金属原子ビーム散乱実験</b>	13
2.1	散乱実験装置	13
2.1.1	漏れ出し原子ビーム	13
2.1.1.1	原子ビームの速度分布	14
2.1.1.2	原子ビームの流量	16
2.1.2	真空系	17
2.1.3	レーザー光源	19
2.1.4	CCD カメラ	21
2.2	原子ビームの速度分布測定	22
2.2.1	原子ビーム速度分布測定の方法	22
2.2.1.1	光の吸収と放出	22
2.2.1.2	光のドップラー効果	23
2.2.1.3	原子ビームの流量とレーザー光を吸収する原子数	25
2.2.2	原子ビーム速度分布の測定方法	25
2.2.3	Rb 原子ビームの速さ分布測定結果	27
2.3	試料	28
2.3.1	成膜方法	28

2.3.1.1	ディッピング法による成膜 . . . . .	28
2.3.1.2	真空蒸着法による成膜 . . . . .	29
2.3.2	原子間力顕微鏡 (AFM) による表面形状測定 . . . . .	29
2.3.3	X 線回折による結晶構造解析 . . . . .	32
2.4	パラフィン表面での散乱の測定 . . . . .	35
2.4.1	ハイパーファイン偏極度測定 . . . . .	35
2.4.2	角度分布測定 . . . . .	37
2.4.3	速度分布測定 . . . . .	43
2.5	結果と議論 . . . . .	44
2.5.1	ハイパーファイン偏極度測定の結果 . . . . .	44
2.5.2	角度分布測定の結果 . . . . .	45
2.5.3	速度分布測定の結果 . . . . .	47
2.6	まとめ: パラフィンコーティング表面でのアルカリ金属原子の散乱 . . . . .	50
<b>第 3 章</b>	<b>背景ガスによる散乱: パラフィンコーティングセル内の速度変化衝突レートの測定</b>	<b>52</b>
3.1	従来の分光的手法による背景ガス測定 . . . . .	52
3.2	速度変化衝突レート測定 . . . . .	53
3.2.1	プローブ光吸収量のスピン偏極依存性 . . . . .	55
3.2.2	速度変化衝突による速度分布の変化 . . . . .	57
3.2.3	速度変化衝突による信号の変化 . . . . .	62
3.2.4	プローブ光からの離脱による信号の減衰 . . . . .	63
3.2.5	速度変化衝突レート測定の実験セットアップと解析 . . . . .	64
3.2.6	平均自由行程と圧力 . . . . .	65
3.3	緩和時間測定 . . . . .	66
3.3.1	磁気光学回転 . . . . .	66
3.3.2	実験セットアップ: 緩和時間測定 . . . . .	68
3.4	パラフィンコーティングセルの作製 . . . . .	68
3.5	結果と議論 . . . . .	71
3.5.1	VCC レート測定結果 . . . . .	71
3.5.2	スピン緩和時間測定結果 . . . . .	72
3.5.3	VCC レートと緩和防止性能 . . . . .	72
3.6	まとめ: パラフィンコーティングセル内の速度変化衝突レートの測定 . . . . .	74
<b>第 4 章</b>	<b>拡散接合サファイアセル内背景ガスの高温特性</b>	<b>76</b>
4.1	単結晶サファイア . . . . .	76
4.1.1	耐アルカリ金属光学材料としてのサファイア . . . . .	76
4.1.2	アルカリ金属原子とサファイア表面との相互作用 . . . . .	77
4.2	拡散接合サファイアセル . . . . .	78

---

4.2.1	サファイアセルの作製 . . . . .	78
4.2.2	サファイアセルのスピンの緩和時間測定 . . . . .	78
4.3	拡散接合サファイアセルでの速度変化衝突レート測定 . . . . .	79
4.4	高温ベークによる速度変化衝突レートの変化 . . . . .	81
4.5	まとめ . . . . .	83
<b>第 5 章</b>	<b>まとめ</b>	<b>84</b>
	<b>参考文献</b>	<b>86</b>

# 第 1 章

## 序論

中を真空に排気したガラス容器などにアルカリ金属蒸気を封入した「アルカリ蒸気セル」は原子物理分野の幅広い実験で利用されている。アルカリ蒸気セルを用いた実験の測定精度を向上するための一つの方法として、セル内壁に「スピン緩和防止コーティング」と呼ばれる特殊なコーティングを施す方法が知られている。近年では、スピン緩和防止コーティングを施したセル（以後、コーティングセルと呼ぶ）を用いた高精度な磁場測定や周波数測定などが注目されている。これらの測定においては、コーティングセル内のアルカリ金属原子の運動が測定の精度に関わる重要な要素の一つであるものの、従来の研究ではあまり注意が払われてこなかった。そこで本研究では、コーティングされたセル内壁やセル内背景ガスによるアルカリ金属原子の散乱を調べた。

### 1.1 アルカリ金属原子

元素周期表の第 1 族元素のうち水素を除いた、リチウム (Li)、ナトリウム (Na)、カリウム (K)、ルビジウム (Rb)、セシウム (Cs) およびフランシウム (Fr) はアルカリ金属と呼ばれる。アルカリ金属原子は、内殻では希ガス様の電子配置をとり最外殻では  $s$  軌道に 1 個の価電子を持つ比較的簡単な原子構造をしている。

Rb を例にしてアルカリ金属原子のエネルギー準位を説明する。図 1.1 にルビジウムのエネルギー準位を示す。ルビジウムは原子番号 37 の元素で、電子配置としてはクリプトン (Kr) の電子配置に加えて  $O$  殻 (主量子数  $n = 5$ ) に電子が 1 つ存在する。そのため基底状態では軌道角運動量量子数  $L = 0$  およびスピン角運動量量子数  $S = 1/2$  で、項記号を用いると基底状態は  $5^2S$  と書ける。第一励起状態では価電子は  $p$  軌道を占有し、軌道角運動量  $L = 1$  となる。軌道角運動量とスピンの相互作用 (スピン-軌道相互作用) によって励起状態のエネルギー準位は分裂する。スピン-軌道相互作用によって分裂したこのような準位構造は微細構造 (fine structure) と呼ばれ、電子の全角運動量  $J = L + S$  の量子数  $J$  で特徴付けられる。今の場合では、 $J = 1 - 1/2 = 1/2$  と  $J = 1 + 1/2 = 3/2$  で特徴付けられる 2 つの微細準位が励起状態に存在し、それぞれの準位は  $5^2P_{1/2}$  と  $5^2P_{3/2}$  で表される。なお、基底状態は  $J = 1/2$  で  $5^2S_{1/2}$  である。基底状態と  $5^2P_{1/2}$  との間の遷移、 $5^2P_{3/2}$  との間の遷移はそれぞれ  $D_1$  遷移、 $D_2$  遷移と呼ばれている。共鳴波長は  $D_1$  遷移の方が長く 795 nm、 $D_2$  遷移で 780 nm である。

原子核の核スピン  $I$  を考えるとこれらの微細準位には更に細かな構造が現れる。核スピンに関連した

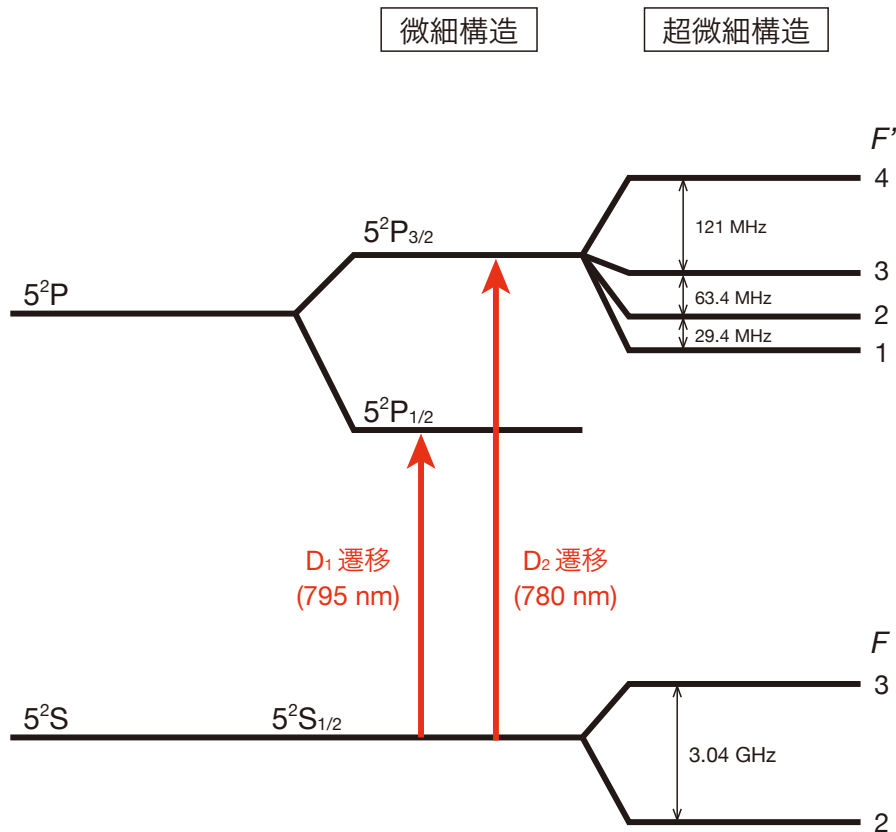


図 1.1  $^{85}\text{Rb}$  ( $I = 5/2$ ) のエネルギー準位図. 見やすくするために縮尺を適宜変えてあり, 図における準位間の間隔は実際のエネルギー差と一致していない. 励起状態の超微細構造は  $5^2P_{3/2}$  についてのみ示している.

この構造は超微細構造 (hyperfine structure) と呼ばれ, 原子の全角運動量  $\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I}$  の量子数  $F$  で特徴付けられる. 自然界にはルビジウムの同位体が  $^{85}\text{Rb}$  と  $^{87}\text{Rb}$  の 2 つ存在し, それぞれ異なる原子核スピン  $I = 5/2$  と  $I = 3/2$  をもつ. 本研究で実験に用いた  $^{85}\text{Rb}$  を考えると, 基底状態に  $F = 5/2 - 1/2 = 2$  と  $F = 5/2 + 1/2 = 3$  の 2 つの超微細準位が存在する. 励起状態も超微細構造を持ち,  $5^2P_{3/2}$  では  $F' = 4, 3, 2, 1$  の超微細準位を持つ.

一般に多電子系では電子の波動関数やスピン軌道相互作用などの計算が非常に複雑で, 原子の構造や性質の理論的な予測と実験結果とを定量的に比較することは難しい. しかし上述したようにアルカリ金属原子は構造が比較的単純で, 理論的な近似計算でも実験結果に近い値が得られ, 理論と実験とを比べやすい. そのため, 原子自体の構造や性質を研究する原子物理学の実験においてアルカリ金属原子は素性の良い実験対象のひとつとされている.

原子物理実験では原子自体の構造や性質に興味があるから, 実験対象の原子は孤立していることが望ましい. したがって, 対象原子は固体や液体中の原子ではなくて気相の原子となる. また, 他の気体原子からの影響を小さく抑えるために, 原子は真空中に排気された容器内に封入されて実験に用いられることが多い. アルカリ金属原子は常温で固体ではあるものの他の固体元素に比べると蒸気圧が高く, 実験に必要な数密度の蒸気を用意するのが簡単であるという利点がある. また, Rb の  $D_1, D_2$  遷移の波長が近赤外領域



図 1.2 円筒形のルビジウム蒸気セルの写真.

であったように、アルカリ金属原子の強い吸収線である  $D$  線は可視光から近赤外の領域であり、扱いやすく安価な半導体レーザーで実験が行える。これらの利点から、アルカリ金属原子は原子物理実験で幅広く使われている。

アルカリ金属原子を封入する真空容器にはガラス製の容器（ガラスセル）がよく使われる。アルカリ金属原子を封入したガラスセルはアルカリ金属蒸気セルと呼ばれる。蒸気セルは小型で軽量であり、移動や設置が容易である。また、一度作ってしまえば長期間に渡って同じ条件でアルカリ金属原子気体を用意できることから、多くの原子物理実験で用いられている。図 1.2 に実際のルビジウム蒸気セルの写真を示す。このセルは円筒形をしており、実験の際には平坦な上下面を通してレーザー光をセルに入射することが多い。セルの側面には細いガラス管が接続されている。このガラス細管は枝管と呼ばれる。ガラスセルにアルカリ金属原子を封入する際には枝管を介して真空装置に繋がれ、セル内が排気される。セル内の圧力を十分低くできたらアルカリ金属をセル内部に付着させ、枝管をバーナーなどで融かしてセルの気密は保ったまま真空装置から切り離す。セル内部に付着したアルカリ金属の塊から蒸気が供給され、真空セル内に気相のアルカリ金属原子が満ちる。蒸気圧は温度に強く依存し、セルを高温にするほどアルカリ金属蒸気の密度を高くすることができる。室温のルビジウムの場合には、セル内の蒸気密度は  $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  のオーダーである。また、セル作製時に意図的に他種的气体を混入していない場合には、アルカリ金属蒸気以外の残留ガス圧力は非常に低い。

## 1.2 光ポンピングとスピン偏極

アルカリ金属原子を用いた実験で極めて重要となる技術に“光ポンピング”と呼ばれるものがある。この光ポンピングによってアルカリ金属原子のスピン状態を偏極させることができ、またそのスピン状態を高感度に光で検出することが可能となる。この節では、まず光ポンピングの原理を簡単に説明した後に、スピン偏極状態の原子を使った実験について触れる。

再度  $^{85}\text{Rb}$  を例にして、光ポンピングの原理とスピン偏極について説明していく。基底状態  $F = 3$  から  $F' = 3$  の遷移に共鳴する周波数の円偏光のレーザーを  $^{85}\text{Rb}$  に照射することを考える（図 1.3）。 $F = 3$  の



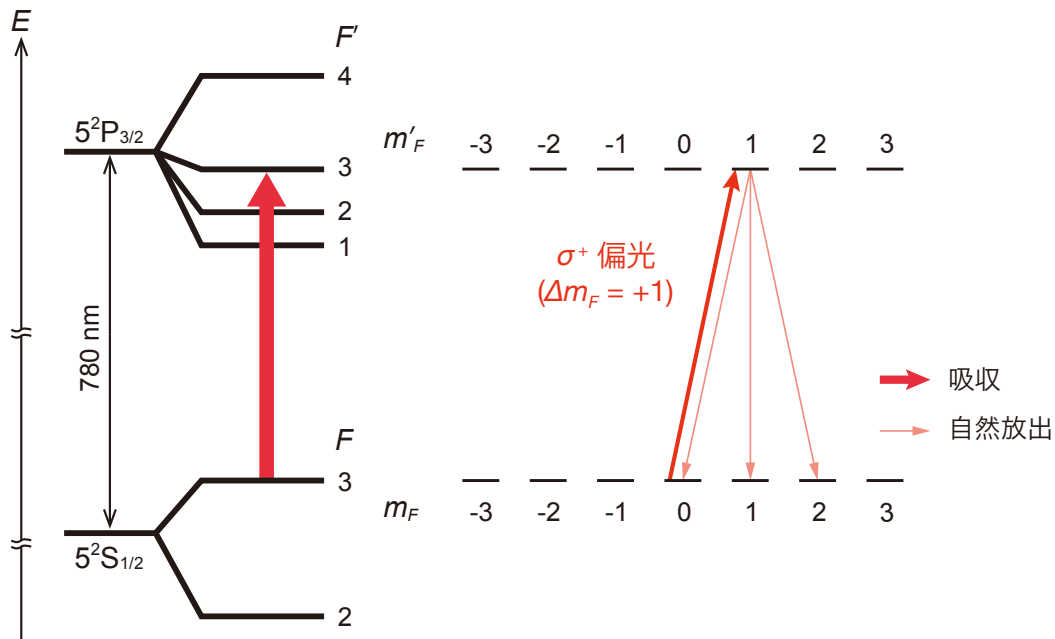


図 1.3 円偏光によるスピン偏極の模式図.

原子はレーザー光を吸収して励起状態に遷移するが、このとき、レーザーが共鳴波長であっても光学遷移における選択則によって禁じられた遷移が存在する。 $\sigma^+$ 円偏光( $\sigma^-$ 円偏光)であれば、光の吸収による磁気量子数の変化 $\Delta m_F = m'_F - m_F$ が $\Delta m_F = +1$  ( $\Delta m_F = -1$ )である準位への遷移しか許されない。図 1.3 では  $F = 3, m_F = 0$  の原子が  $\sigma^+$  円偏光を吸収した場合に許される光学遷移を表している。励起した原子は蛍光を自然放出して基底状態に脱励起するが、この際には  $\Delta m_F = 0, \pm 1$  の遷移が許されている。図 1.3 では  $m_F = 0$  からの遷移しか示していないが、他の磁気副準位からの遷移も同様である。したがって、 $\sigma_+$  偏光による遷移を繰り返すと  $m_F$  が小さな準位の原子は次第に  $m_F$  が大きな準位に向かう方向に“ポンプ”され、原子の占有数は  $m_F = +3$  に偏ることとなる。一般には、このように磁気副準位間で占有数の偏りがある状態をスピン偏極状態と呼ぶ。

レーザーのような狭帯域の光源を用いた場合には、別の偏極状態も存在する。上述の例でレーザー光によって Rb 原子を励起する際、超微細準位間の周波数差がレーザーの線幅に対して大きいため、 $F = 2$  の原子は励起されない。一方で、 $F = 3$  から  $F' = 3$  へ励起された原子が基底状態に脱励起する際には、 $\Delta F = 0, \pm 1$  の遷移が許され、 $F = 2$  への自然放出もあり得る(図 1.4)。したがって、 $F = 3$  を占める原子は次第にポンプされ、原子の占有数は  $F = 2$  に偏ることとなる。2つの超微細準位  $F = 2, 3$  のエネルギー差は周波数で表すとおよそ 3.0 GHz であり、これは熱エネルギーに換算すると 0.14 K となるため室温での熱平衡状態においては  $F = 3, 2$  の占有数は等しいが、上述のようにして占有数を偏極させられる。このような超微細準位間の占有数の偏りは“ハイパーファイン偏極 (hyperfine polarization)”などと呼ばれる。広義にはハイパーファイン偏極もスピン偏極に含まれる。

光ポンピングによるスピン状態制御は開発されてから今日まで様々な実験に応用され、精密なレーザー分光や原子の状態制御などにおける基礎的な技術となっている [1, 2]。その有用性と発展性から、光ポンピングを考案した A. Kastler は 1966 年にノーベル賞を受賞している。光ポンピングによって可能となる

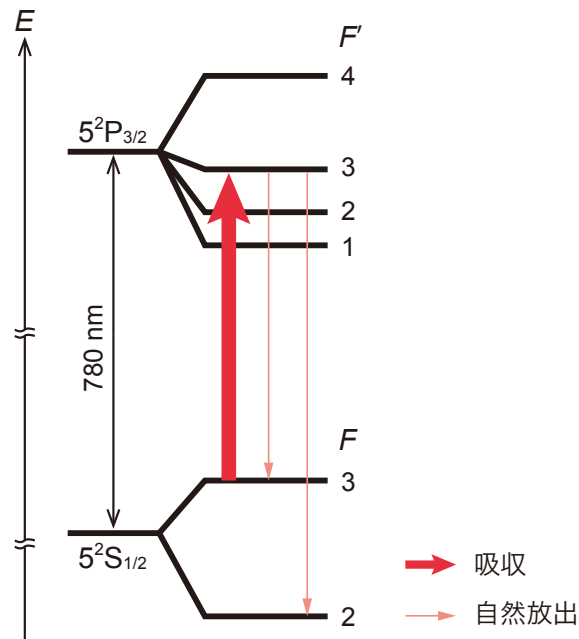


図 1.4 ハイパーファイン偏極の模式図.

実験や測定は多岐に渡るが、Kastler は光ポンピングを利用して原子の磁気共鳴を詳細に研究していた。

磁気副準位間や超微細準位間の周波数差に一致した振動磁場を原子に印加すると磁気共鳴が起こる。しかし熱平衡状態では、準位間に占有数の偏りはないから、磁気共鳴によって例えば異なる準位に状態が遷移したとしても占有数のアンサンブル平均に変化は現れず磁気共鳴の観測は難しい。一方でスピン偏極した原子で磁気共鳴が起こると、スピン偏極が崩れることとなり磁気共鳴を容易に観測できる。

磁気共鳴を観測できると、超微細準位や磁気副準位の周波数差を測定できる。第 1.1 節で述べたように超微細構造は電子の角運動量と原子核スピンの相互作用に由来するから、超微細準位の周波数差はこの相互作用の強さを表している。磁気副準位の周波数差は原子の持つ磁気モーメントと環境の磁場との相互作用に由来し、磁気共鳴を使った測定から原子固有の磁気モーメントを知ることができる [2]。これら超微細相互作用の強さや磁気モーメントといった量は原子固有の値であり、原子構造を知る上で極めて重要な情報である。

また逆に、原子固有の値である超微細準位間の周波数差を利用して現在の周波数標準が定められている。つまり、ある原子（のある同位体）を選べば環境からの影響がない場合には超微細準位の周波数差は一意に決まるから、その遷移周波数を基準として周波数を定めれば極めて精確で安定な標準とすることができる。現在ではセシウムの同位体  $^{133}\text{Cs}$  の超微細遷移の遷移周波数  $9\,192\,631\,770\text{ Hz}$  を基準として時間が定義されている。

磁気副準位間の磁気共鳴も、磁気モーメントの測定のみならず、様々な分野で応用されている。近年大きな注目を集めている応用のひとつに、超高精度な磁場測定が挙げられる [3]。上述のように磁気副準位間の磁気共鳴の遷移周波数は原子固有の磁気モーメントと環境の磁場に依存する。よって、磁気共鳴の遷移周波数を精確に測れば、環境の磁場を精確に知ることができる。近年の精力的な研究によって測定精度は原理上はフェムトテスラ (fT) オーダーの磁場を検知できるほどとなっている [3]。

### 1.3 スピン緩和

光ポンピングによってスピン偏極したアルカリ金属原子が数多くの実験に応用されていることは上で述べたが、それらの実験において測定精度に大きな影響を与えるのがスピン偏極の緩和（スピン緩和）である。スピン偏極状態を利用した実験では、一般に、スピン偏極が緩和するまでの時間（スピン緩和時間）が長ければ長いほど精密な測定や高度な量子状態制御が可能となる。

アルカリ蒸気セル内の原子を考えると、スピン緩和の要因としてまず考えられるのがセル内壁との衝突である。アルカリ金属原子はセル内を毎秒数百メートルの速さで飛び回っており、セル内壁とも衝突している。ガラス壁との衝突はアルカリ金属原子のスピン状態を著しく乱し、一回の衝突でスピン偏極（より精確には磁気副準位間のスピン偏極）を完全に緩和してしまうことが実験的に知られている [2]。

図 1.2 のルビジウム蒸気セルを例に室温における内壁との衝突レートとスピン緩和時間を見積もってみる。セルの内径は 20 mm, 内側の長さは 30 mm とする。室温では Rb 原子の数密度  $n$  は  $n \sim 1 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  で [4], 平均自由行程は  $1 \times 10^5 \text{ cm}$  のオーダーでセルの大きさよりも十分大きい。つまり, Rb 原子同士の衝突は無視でき, Rb 原子はセル内壁から内壁を自由に運動していると考えられる。セル内壁のある微小面  $dA$  に単位時間当たりに衝突する原子数  $dN_{\text{wall}}$  は,

$$dN_{\text{wall}} = \frac{1}{4} n \bar{v} dA, \quad (1.1)$$

と書ける。ここで  $\bar{v}$  は Rb 原子の平均速さで、室温では  $\bar{v} = 3 \times 10^4 \text{ cm/s}$  のオーダーである。式 (1.1) をセル内面全体に渡って積分すると、単位時間当たりに内壁と衝突する原子数  $N_{\text{wall}}$  は,

$$N_{\text{wall}} = \frac{1}{4} n \bar{v} S_{\text{cell}}, \quad (1.2)$$

とできる。 $S_{\text{cell}}$  は内面の表面積である。一個の原子に着目して単位時間当たりに何回衝突しているか、という衝突レート  $\gamma_{\text{wall}}$  は式 (1.2) をセル内の原子数で割ればよく,

$$\gamma_{\text{wall}} = \frac{N_{\text{wall}}}{nV_{\text{cell}}} = \frac{\bar{v}S_{\text{cell}}}{4V_{\text{cell}}}, \quad (1.3)$$

と計算できる。 $V_{\text{cell}}$  はセルの容積を表している。セルの寸法と Rb 原子の平均速さを代入して計算すると、 $\gamma_{\text{wall}} \approx 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$  と見積れる。原子が壁から壁に到達するまでの平均時間  $\tau_{\text{wall}}$  は  $\gamma_{\text{wall}}$  の逆数をとればよく、 $\tau_{\text{wall}} \approx 50 \mu\text{s}$  となる。一回の衝突でスピン偏極が緩和する場合には、緩和時間は  $\tau_{\text{wall}}$  と一致しおよそ  $50 \mu\text{s}$  と見積れる。

測定精度を向上させるためにセル内アルカリ金属原子の緩和時間を長くする方法としては、大きく分けて2つの方法がある(図 1.5)。ひとつは、アルカリ金属原子と衝突してもスピン偏極を崩しにくい種類の気体をセル内に封入し、アルカリ金属原子のガラス壁との衝突レートを低くする方法である。もうひとつは、アルカリ金属原子が衝突してもスピン緩和しにくい特殊なコーティング（スピン緩和防止コーティング）をセル内壁に施す方法である。

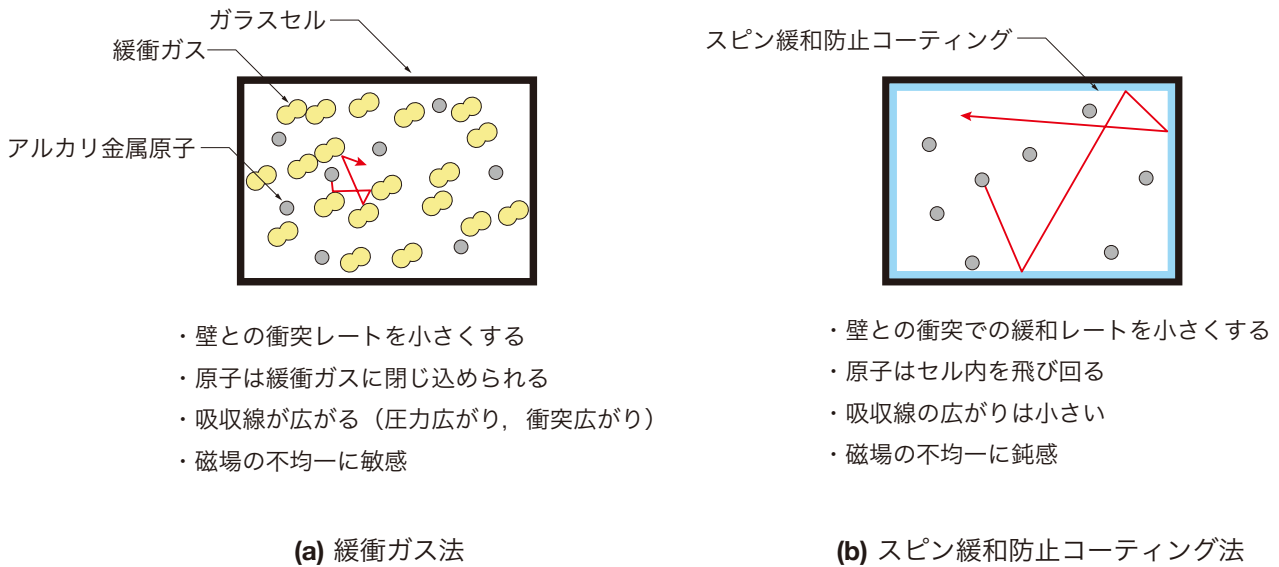


図 1.5 スピン緩和時間を長くする方策. 赤矢印は原子の運動を表している.

### 1.3.1 緩衝ガスによるスピン緩和防止

希ガスや窒素ガスといった気体はアルカリ金属原子との衝突でもスピン緩和を引き起こしにくい。そのため、これらの種の気体を十分な量セルに混入すると緩衝ガスとして働き、アルカリ金属原子はスピン緩和せずに緩衝ガスと衝突を繰り返しセル内を拡散的に運動する。すると、アルカリ金属原子のガラス壁との衝突レートを小さくなり、スピン緩和時間を長くできる。この方法ではスピン緩和時間は緩衝ガスの種類と圧力に依存する。

### 1.3.2 スピン緩和防止コーティングによるスピン緩和防止

スピン緩和防止コーティングを用いた方法では、内壁との衝突レートを小さくするのではなく、内壁との衝突におけるスピン緩和の確率を小さくする。一般に、アルカリ金属原子は固体表面と衝突するとスピン緩和してしまう。しかし、1958年にRobinsonらが飽和炭化水素化合物のパラフィンがスピン緩和防止コーティングとして働くことを発見した[5]。通常の固体表面では1回の衝突で完全にスピン緩和してしまうところ、パラフィンとの衝突では衝突におけるスピン緩和は非常に緩やかで、原子アンサンブルのスピン偏極が緩和してしまうまでに数千回も衝突できる。これはすなわち、スピン緩和時間を3桁も長くできることを意味している。スピン緩和防止コーティング法では、スピン緩和時間はコーティングとの衝突におけるスピン緩和の確率、つまりコーティングの緩和防止性能に依存する。次節から、スピン緩和防止コーティングについて詳しく述べていく。

## 1.4 スピン緩和防止コーティング

### 1.4.1 スピン緩和防止コーティングの利点と応用

コーティング法は緩衝ガスを混入する方法に比べていくつかの利点がある。第一に、緩衝ガスを混入した場合にはアルカリ金属原子の吸収線は緩衝ガスとの衝突の影響で広がる（圧力広がり）一方で、コーティング法では圧力広がりが無視できて光の吸収が強い。光の吸収が強い方がスピン偏極の生成や検出は容易で、測定の精度にも大きく関わる。第二に、緩衝ガス法に比べて環境磁場の不均一による磁気共鳴線の広がりを小さくできる。緩衝ガス法では、原子は緩衝ガスによって運動を阻害されていて、測定の間では緩衝ガスによって局所に閉じ込められていると考えられる。よって、磁場がセルにおいて不均一なときには、磁気共鳴の遷移周波数はその不均一さを反映した幅を持つことになる。他方で、コーティング法ではアルカリ金属原子の平均自由行程は、背景ガスの圧力にはよるものの、緩衝ガス法のそれよりも長く、原子はセル内を飛び回る。そのため、どの原子も不均一な磁場中を飛び回り、磁気共鳴の遷移周波数は不均一な磁場を平均した磁場に対応した値となり、幅は緩衝ガス法の場合よりも狭い。これらの利点からスピン緩和防止コーティングを応用した研究は盛んに行われており、超高感度磁力計 [3,6,7] や周波数標準 [8,9], 光の伝搬に関する実験 [10,11], スピンスクイーミング [12], 量子メモリー [13] などに応用されている。また最近の実験においても、非エルミート・反PT対称性の光学実験 [14] やレーザー冷却していない熱い原子での干渉計 [15] など応用の広がりを見せている。

### 1.4.2 アルカリ金属原子とスピン緩和防止コーティングとの相互作用

スピン緩和防止コーティングとして初めて発見され利用されたパラフィンとは飽和炭化水素化合物（アルカン）である。慣習として、炭素数が数十以上の長いアルカンをパラフィンと称することが多い。また、炭素数が異なるアルカンが混じった物質をパラフィンあるいはパラフィンワックスと称することもある。化学式は  $C_nH_{2n+2}$  で表され、直鎖パラフィンの構造式は図 1.6 である。

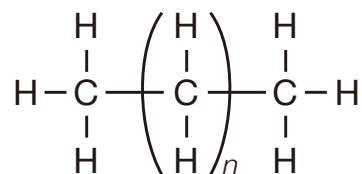


図 1.6 パラフィンの構造式。

パラフィンコーティングは発見された当初から精力的に研究され [16-18], アルカリ金属原子とパラフィン表面との相互作用が調査されてきた。

Goldenberg らは進行方向の揃ったビーム状のアルカリ金属原子を様々な種類の表面に入射し、原子が表面から出射するか完全に吸着して検出できないかを調べた [16]. ガラス表面や金属表面、他の多くの有機高分子膜が原子を完全に吸着してしまう一方で、パラフィン表面はアルカリ金属原子を吸着しにくいことが明らかになった。



Brewer [17] および Bouciat ら [18] はルビジウム蒸気セルの内壁にパラフィンにコーティングし、スピン緩和レートの温度依存性を測定してパラフィンとアルカリ金属原子との相互作用を調べた。パラフィンにコーティングしたセルのスピン緩和レートをセルの温度を変化させて測定すると、室温から 60°C 程度の間では温度が高いほどスピン緩和レートが小さかった。スピン緩和レートの温度に対するこのような依存性は、アルカリ金属原子がパラフィンに物理吸着すると考えれば説明できる。アルカリ金属原子はパラフィンとの衝突で弾性散乱のように反射されず、またパラフィン表面上で化学結合せず、ファンデルワールス力によって表面に吸着（物理吸着）していると考え、原子はパラフィン表面に物理吸着している間に相互作用を受けてスピン状態が乱される。パラフィン表面の温度が高いと物理吸着している時間（吸着時間）が短くなるため、スピンを乱すような相互作用を受ける時間が短くなり、表面でのスピン緩和レートが小さくなる。吸着時間  $\tau_a$  は温度  $T$  に対して、

$$\tau_a = \tau_{a0} \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right), \quad (1.4)$$

で表せる。 $\tau_{a0}$  は温度が高い極限での吸着時間で、弾性散乱されるときに衝突時間（典型的には  $10^{-12}$  s オーダー）と解釈できる。また、 $E_a$  は吸着エネルギーと呼ばれ、物理吸着のポテンシャルから抜け出すために必要な運動エネルギーを意味している。 $k_B$  はボルツマン定数、 $T$  は温度である。Bouchiat らと Brewer はスピン緩和レートの温度依存性からそれぞれ吸着エネルギー  $E_a$  を求め、 $E_a \sim 0.1$  eV であった [17, 18]。また Bouciat らは様々な条件下で詳細な測定を行い、室温において表面への吸着時間はナノ秒オーダーと見積もった [18]。

吸着エネルギーや吸着時間は表面での相互作用の強さを特徴付ける重要なパラメータである。そのため、これまでに数多くの実験が報告されていて、パラフィン [16–23] 以外の緩和防止コーティング材のオクタデシルトリクロロシラン (octadecyltrichlorosilane: OTS) [21, 23–25] やポリジメチルシロキサン (polydimethylsiloxane: PDMS) [26] においても吸着時間や吸着エネルギーが測定されている。

更には、吸着時のパラフィンとの相互作用のモデルが Bouciat らによって提唱された [18]。このモデルでは、アルカリ原子のパラフィン表面における 2 種類の相互作用が考えられている。一つはパラフィン中の水素の核スピン（陽子スピン）とアルカリ原子との磁気的な相互作用である。パラフィンを構成する炭素原子と水素原子のうち、安定な同位体で核スピンを持つのは水素原子である。したがって、水素原子の原子核は核磁気モーメントを有し、アルカリ金属原子がパラフィン表面に吸着しているとき原子は水素の原子核が作る磁場を感じている。吸着している原子は表面上で熱運動しており、また他の吸着サイトに移動することもあるから、原子が感じる磁場は時間的にランダムに振動している。この振動磁場によるスピン状態の変化は緩やかではあるものの、パラフィン表面との数千回の衝突の間にスピン緩和を引き起こす。スピン緩和を引き起こすもう一つの相互作用は、原子の表面上での熱運動が持つ並進角運動量とアルカリ原子の電子スピンの相互作用である。この相互作用はスピン-軌道相互作用と同様の相互作用で、相互作用の大きさは原子の並進運動の速度に依存する。そのため熱運動する原子は時間的にランダムに振動する相互作用を受け、スピン状態が変化する。

## 1.5 緩和防止コーティングを施したガラスセル内のアルカリ金属原子の運動

前節で述べたように、アルカリ原子のコーティングとの相互作用は調べられてきた。しかし、コーティングを施したガラスセル（コーティングセル）内のアルカリ金属原子の運動にはあまり注意が払われてこなかった。従来受け入れられてきたアルカリ金属原子の運動は、原子はセル内を自由に飛び回りコーティングとの衝突を繰り返す、という素朴な描像である（図 1.5b）。この描像においては背景ガスとの衝突は無視され、コーティング表面での散乱における散乱角度や速度については言及されない。

しかしながら、緩和防止コーティングの応用において原子の運動が重要な要因であることは少なくない。例えば、超高感度磁力計での重要性が挙げられる。スピン偏極アルカリ金属原子を用いた超高感度な磁場測定にもいくつかの方法があるが、コーティングを応用した方法で近年大きな期待を集めているのは非線形磁気光学回転（NMOR: nonlinear magneto-optical rotation）を利用した磁場測定方法である。NMOR 方式の磁場測定では、簡便な光学系ながら fT（フェムトテスラ）オーダーの感度を達成しており、対称性を検証する基礎物理実験から生体医療まで幅広い応用が期待されている [3, 6, 7]。磁場測定においては、磁気共鳴の観測と同様に、磁場の変化に応じて原子スピン状態に関連した信号が共鳴的に変化する。磁場に対する感度が高いとはすなわち、磁場が変化した時の信号の共鳴幅が狭いことに対応する。この狭い共鳴幅を可能としているのが緩和防止コーティングである。セル内を飛び回るアルカリ金属原子がレーザー光によってスピン偏極された後にコーティングとの衝突を繰り返し、再びレーザー光と相互作用することによって線幅が狭くなっていると考えられている [27]（図 1.7）。原子の内部状態を保ったまま時間間隔において複数回相互作用するため、ラムゼー効果（Ramsey effect）によって細い共鳴ピークが現れる。そのため、この現象は wall-induced Ramsey effect と呼ばれている。セル内原子の運動は wall-induced Ramsey effect に直接的に関わり、その詳細を知る重要性は大きい。

他にも、小型原子時計など、コーティングを応用した小型デバイスにおける重要性も挙げられる [28, 29]。これらの小型デバイスにおいては、アルカリ金属蒸気源と測定を行う領域が細い通路でつながれていることが多い。細い通路を通じて測定領域に効率よく原子を供給するためには、またどのように原子が供給さ

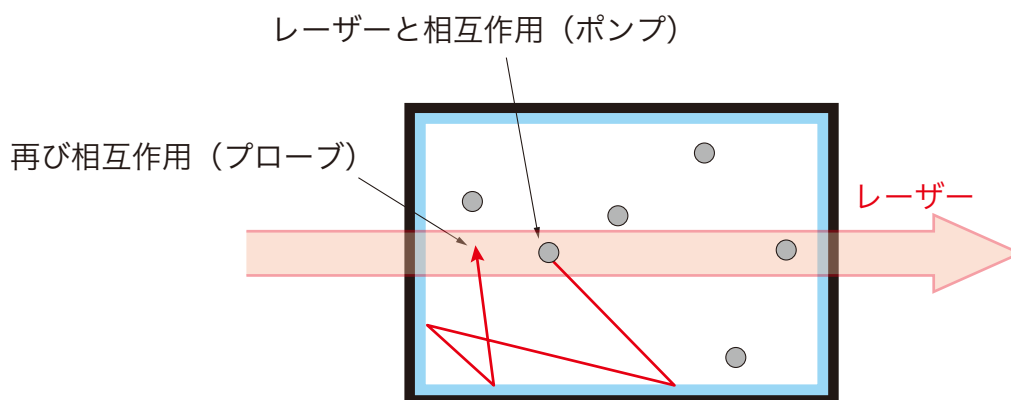


図 1.7 Wall-induced Ramsey effect の模式図。

れるのかを知るためには、背景ガスとの衝突は無視できるかといったことやコーティング表面でどのように散乱されるかの知見が不可欠である。例えば、もし原子がコーティング表面で鏡面反射される場合には、表面で拡散反射される場合に比べて原子の供給は著しく早くなる [30].

また、コーティングがアルカリ原子の輸送に与える影響の理解は、不安定核種のアルカリ原子を使った実験 [31–34] における効率的な原子の供給に役立つと考えられる。

以上述べたように、コーティング表面における散乱や背景ガスとの衝突の理解は重要であるにも関わらず、これまであまり注意が払われてこなかった。そもそも、コーティングを施したガラスセル（コーティングセル）を使って実験において散乱の様子に言及されたことは数少ない [35–37]. その上、実験の結果をうまく説明するためには散乱原子の速度がマクスウェル分布とは異なる速度分布に従う必要がある報告 [35] もあれば、マクスウェル分布を仮定して実験結果を説明できる報告もある [36, 37].

また、コーティングセルを破壊して中に入っていたガスを質量分析した結果、アルカリ原子との反応によって生じたと考えられるガスの存在が報告されている [25, 38, 39] もの、背景ガスの圧力や密度などは測られていない。背景ガスの圧力がこれまで考えられてきたよりも高く無視できない場合には、アルカリ原子と背景ガスとの衝突による摂動が加わり、高精度な実験の妨げになる可能性がある。

他にも、スピン緩和防止コーティングの緩和防止性能の評価に影響を与える可能性もある。これまでの描像では背景ガスとの衝突は無視されており、緩和防止性能の評価においてもアルカリ原子は壁から壁へと自由に運動するとされてきた。スピン緩和時間はセルの大きさにも依存するため、コーティングの緩和防止性能を評価する場合にはスピン緩和するまでに何回衝突できるかという量（本論文では緩和衝突回数と表記する）を使うと便利である。緩和衝突回数  $N_r$  は、背景ガスとの衝突を無視すれば、スピン緩和時間  $\tau_{spin}$  と式 (1.3) の壁との衝突レート  $\gamma_{wall}$  から

$$N = \tau_{spin} \gamma_{wall}, \quad (1.5)$$

と計算できる。しかし背景ガスとの衝突が無視できない場合には壁との衝突レートは式 (1.3) では計算できず、背景ガスが緩和防止性能の評価に影響することとなる。

## 1.6 本研究の目的と結果

以上のような背景から、コーティングセル内でアルカリ金属原子がどのように運動しているかを知ることには大きな意義がある。コーティングセルにおいてアルカリ金属原子の運動に影響を与える要因としては、

1. コーティングされたセル内壁での散乱,
2. 背景ガスによる散乱,

が挙げられる。なお、室温での蒸気密度ではアルカリ金属原子同士の原子間隔は広いと無視した。本研究では上記それぞれの散乱について別々の実験でアプローチし、コーティングセルにおけるアルカリ金属原子の運動に対する知見を深めた。

コーティング表面によるアルカリ金属原子の散乱は、パラフィン膜によるルビジウム原子ビーム散乱実験を行なって調べた。散乱実験では方向の揃ったビーム状の原子をパラフィン膜に入射し、散乱してきた



原子の角度分布と速度分布を測定した。原子ビームの散乱実験は散乱角度分布や速度分布を直接的に測定できる方法であるものの [40]、これまでに緩和防止コーティング表面での散乱角度分布や速度分布の測定が行われたことはない。散乱実験の結果、角度分布は余弦則を示し、速度分布は Maxwell 分布にしたがった。その際の Maxwell 分布の広がりから散乱原子の温度を求めると、入射した原子の温度よりも 100°C 以上低く、パラフィン膜の温度と近かった。これらの結果から、Rb 原子の並進運動状態はパラフィン膜による一回の散乱でパラフィン膜と熱平衡状態に至ると結論づけた。これまでもパラフィンに衝突や吸着した原子の並進運動は熱平衡状態に至ると考えられてきたことは多い [18, 27, 36, 37] が、本研究によって実験的な裏付けを与えることができた。散乱実験については第2章で述べている。

コーティングセル内背景ガスの影響を調べるために、パラフィンをコーティングしたルビジウム蒸気セルを多数作製し、背景ガスとの衝突レートを測定した。セル内背景ガスとの衝突の影響を測定する分光的な手法は様々あるが、コーティングセル内の背景ガスの影響を調べるのに適した方法はなかった。そこで本研究でコーティングセル内の背景ガスとの衝突レートを測定する手法を開発した。作製したパラフィンコーティングセルでの衝突レートを測定したところ、背景ガスとの衝突は無視できず、アルカリ原子の平均自由行程はセルの大きさよりも短いことがわかった。これらの手法や測定結果について第3章で詳しく説明する。

これらの研究成果により、コーティングセル内アルカリ金属原子の運動の描像は、従来のようなコーティング表面間を自由に飛び回る描像ではないことが明らかにできた。アルカリ金属原子は背景ガスと衝突を繰り返しながらコーティング表面まで到達し、一度の衝突で並進運動はコーティング表面との熱平衡に達する。

また、本研究で考案した衝突レート測定方法が 1 Pa 以下の低圧ガスとの衝突を測るのに簡便な方法であったため、コーティングセルとは別に、単結晶サファイアでできたアルカリ金属蒸気セル（サファイアセル）の背景ガスとの衝突レートを測定した。単結晶サファイアはアルカリ金属蒸気との反応性が低いことで知られ、高温でのアルカリ金属を使った実験に利用されている。また、サファイア表面とアルカリ金属原子との相互作用は特徴的で近年注目を集めている [41–43]。これらの実験へ応用されているサファイアセルであるが、単結晶サファイアの加工が難しいことから、アルカリ金属蒸気セルとして用いるために特殊な接着剤や固定具を使うことが多い。本研究では接着剤や固定具を使用しないサファイアセルを作製し、ルビジウム蒸気を封入した。接着剤や固定具を使用しないため、高温にしても汚染や歪みの心配が少ない利点がある。しかしこの種のサファイアセルはこれまで高温実験に用いられたことがなく、高温に耐えうるアルカリ金属蒸気サファイアセルなのか実証されていない。そこで本実験で高温にした際の背景ガスとの衝突レートに着目し、高温に晒した際の衝突レートの変化を測定した。サファイアセルの背景や衝突レート測定の方法、結果を第4章で説明する。

## 第 2 章

# 壁面での散乱：パラフィン表面でのアルカリ金属原子ビーム散乱実験

本章では、スピン緩和防止コーティング表面でのアルカリ金属原子の散乱実験を述べる。本実験ではスピン緩和防止コーティング表面としてパラフィン膜を用意し、パラフィン表面に運動方向の揃ったビーム状のルビジウム原子流を入射した。パラフィン表面で散乱されたルビジウム原子はレーザー光と CCD (charge coupled device) カメラを用いて検出し、散乱原子の散乱角分布と速度分布を測定した。

### 2.1 散乱実験装置

#### 2.1.1 漏れ出し原子ビーム

運動方向の揃ったビーム状の気体原子の流れは原子ビームと呼ばれる。アルカリ金属のように室温で固体の元素の場合には、小さな孔の開いた真空容器内で原子ビーム源を温め、孔から漏れ出てくる原子をスリットでコリメートしてビーム状に成形することが多い。このような漏れ出し原子ビームの模式図を図 2.1 に示す。

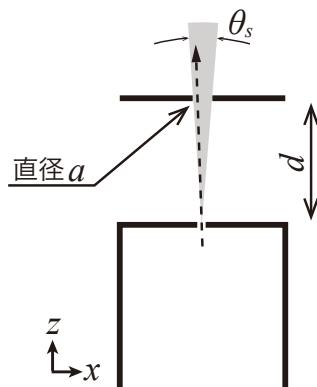


図 2.1 漏れ出し原子ビーム。オープンに空いた小さな孔から原子が漏れ出ており、 $d$  だけ離れたところにある幅  $a$  のスリットでコリメートする。オープンの孔とスリットに垂直な方向を  $z$  軸に取っている。

図 2.1 にはビーム源が入った容器とスリットが描かれており、これらは真空中に設置されている。ビーム源入りの容器はよく原子オーブンと呼ばれ、数百°C程度に温められる。温められるとビーム源の蒸気圧は高くなり、オーブンの小さな孔からは真空中に原子が漏れ出る。漏れ出た原子の運動方向はスリットによって選ばれ、スリットを通過した原子は方向が揃ったビーム状になって流れていく。

### 2.1.1.1 原子ビームの速度分布

図 2.1 を使って、漏れ出し原子ビームの速度分布について説明する。

原子オーブンにあいた小さな孔から原子が漏れているとき、単位時間あたりに孔を通る原子の速度分布は  $x$  および  $y$  方向、 $z$  方向について次のように書ける：

$$f_x(v_x)dv_x = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_D} \exp\left(-\frac{v_x^2}{v_D^2}\right) dv_x, \quad (2.1)$$

$$f_y(v_y)dv_y = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_D} \exp\left(-\frac{v_y^2}{v_D^2}\right) dv_y, \quad (2.2)$$

$$f_z(v_z)dv_z = \frac{2}{v_D^2} v_z \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) dv_z. \quad (2.3)$$

ここで  $v_x, v_y, v_z$  はそれぞれ  $x$  方向、 $y$  方向、 $z$  方向の速度を表す。 $v_D$  は最確速度と呼ばれ、原子質量  $m$ 、ボルツマン定数  $k_B$ 、原子気体の温度  $T$  で決まる：

$$v_D = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}. \quad (2.4)$$

孔を通る原子の速さ  $v$  の分布  $f_v(v)dv$  を知りたい場合には式 (2.1)-(2.3) を速度空間内で極座標変換すればよく、

$$f_v(v)dv = \frac{2}{v_D^4} v^3 \exp\left(-\frac{v^2}{v_D^2}\right) dv, \quad (2.5)$$

と表せる。原子の角度の分布は、 $z$  軸からの角度（天頂角） $\theta$  方向の立体角  $d\omega$  を通過する原子の分布  $f_\theta(\theta)d\omega$  で表すことができ、式 (2.1)-(2.3) から

$$f_\theta(\theta)d\omega = \frac{1}{\pi} \cos\theta d\omega, \quad (2.6)$$

と計算できる。

図 2.1 で模式的に表している漏れ出し原子ビームでは、孔から漏れ出た原子を距離  $d$  だけ離れた幅  $a$  のスリットでコリメートしている。スリットによるコリメートは原子の進む方向を選択しているだけで、速さ  $v$  は選択していない。したがって、原子ビームの速さ分布（より精確に言えばスリットを通過する原子の速さ分布） $f_v^B$  は式 (2.5) に比例し、

$$f_v^B dv \propto f_v dv = \frac{2}{v_D^4} v^3 \exp\left(-\frac{v^2}{v_D^2}\right) dv \quad (2.7)$$

と書ける。他方で、原子ビームにおいては  $a \ll d$  とするから、スリットを通過する原子の角度分布  $f_\theta^B(\theta)d\omega$  は、

$$f_\theta^B(\theta)d\omega = \frac{1}{\pi} \cos\theta d\omega \simeq \frac{d\omega}{\pi}, \quad (2.8)$$

と近似できる。このときの  $\theta$  の広がり（原子ビームの角度広がり） $\theta_s$  は

$$\theta_s \simeq \frac{a}{d}, \quad (2.9)$$

で近似できる。

また、スリットを通過した原子の直交座標系での分布も計算できる。簡単のため、スリットは直径  $a$  の円形とする。まず、速度空間において円柱座標系  $(v_{\parallel}, \varphi, v_z)$  を考える：

$$v_x = v_{\parallel} \cos \varphi, \quad (2.10)$$

$$v_y = v_{\parallel} \sin \varphi, \quad (2.11)$$

$$dv_x dv_y = v_{\parallel} dv_{\parallel} d\varphi. \quad (2.12)$$

オープンの孔から出た原子がスリットを通過するためには、 $v_{\parallel}$  と  $v_z$  の比が

$$0 < \frac{v_{\parallel}}{v_z} < \frac{a}{2d}, \quad (2.13)$$

を満たさなければならない。よって、スリットを通過する原子の  $v_z$  の分布を知りたいければ、 $f_x(v_x)f_y(v_y)f_z(v_z)dv_x dv_y dv_z$  を  $v_{\parallel}, \varphi$  について

$$0 < v_{\parallel} < \frac{a}{2d} v_z, \quad (2.14)$$

$$0 < \varphi < 2\pi. \quad (2.15)$$

の範囲で積分すれば良い。したがって、

$$\begin{aligned} f_z^B(v_z)dv_z &= \int_0^{v_z a/2d} dv_{\parallel} \int_0^{2\pi} d\varphi \frac{2}{\pi v_D^4} v_z v_{\parallel} \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) \exp\left(-\frac{v_{\parallel}^2}{v_D^2}\right) dv_z \\ &= \frac{2}{v_D^2} v_z \left[ 1 - \exp\left\{-\left(\frac{a}{2d}\right)^2 \frac{v_z^2}{v_D^2}\right\} \right] \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) dv_z, \end{aligned} \quad (2.16)$$

と表せる。 $\exp(-x^2)$  を  $x = 0$  付近で2次まで近似すると、

$$\exp(-x^2) \simeq 1 - x^2, \quad (2.17)$$

と近似できる。上記のように、一般的には  $a/2d \ll 1$  が成り立つから、式(2.16)は

$$f_z^B(v_z)dv_z \simeq \frac{2}{v_D^4} \left(\frac{a}{2d}\right)^2 v_z^3 \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) dv_z, \quad (2.18)$$

と近似できる。

スリットを通過する原子の  $x, y$  方向の速度分布  $f_x^B dv_x, f_y^B dv_y$  は、同様にして、 $f_x(v_x)f_y(v_y)f_z(v_z)dv_x dv_y dv_z$  を  $v_z$  について

$$\frac{2d}{a} v_{\parallel} < v_z < \infty, \quad (2.19)$$

の範囲で積分すれば求められる。つまり、

$$\begin{aligned}
f_x^B(v_x)f_y^B(v_y)dv_xdv_y &= \int_{2dv_z/a}^{\infty} dv_z \frac{2}{\pi v_D^4} v_z v_{\parallel} \exp\left(-\frac{v_{\parallel}^2}{v_D^2}\right) \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) dv_{\parallel} d\varphi \\
&= \frac{1}{\pi v_D^2} v_{\parallel} \exp\left[-\left\{1 + \left(\frac{2d}{a}\right)^2\right\} \frac{v_{\parallel}^2}{v_D^2}\right] dv_{\parallel} d\varphi \\
&= \frac{1}{\pi v_D^2} \exp\left[-\left\{1 + \left(\frac{2d}{a}\right)^2\right\} \frac{v_x^2 + v_y^2}{v_D^2}\right] dv_x dv_y \\
&\simeq \frac{1}{\pi v_D^2} \exp\left\{-\left(\frac{2d}{a}\right)^2 \frac{v_x^2 + v_y^2}{v_D^2}\right\} dv_x dv_y.
\end{aligned} \tag{2.20}$$

今は  $x$  方向と  $y$  方向に関して等方的なので、

$$f_x^B dv_x = f_y^B dv_y \simeq \frac{1}{\sqrt{\pi} v_D} \exp\left\{-\left(\frac{2d}{a}\right)^2 \frac{v_{x,y}^2}{v_D^2}\right\} dv_{x,y}, \tag{2.21}$$

と表せる。

### 2.1.1.2 原子ビームの流量

オーブンの孔を単位時間あたりに通過する原子数（すなわち流量） $q_a$  を考える。 $q_a$  はオーブン内にいる原子が孔に入射する流量と等しいはずだから、孔の面積を  $A_a$ 、オーブン内の原子数密度を  $n_o$  とすると

$$q_a = \frac{n_o \bar{v} A_a}{4}, \tag{2.22}$$

と計算できる。ここで  $\bar{v}$  はオーブン内原子の平均速度で、

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_D. \tag{2.23}$$

オーブンの孔から見たスリットの立体角を  $\Omega$  とすると、今の場合には、

$$\Omega = \frac{a^2 \pi / 4}{d^2} = \pi \left(\frac{a}{2d}\right)^2, \tag{2.24}$$

と計算できる。これを式 (2.18) に代入すると、

$$f_z^B(v_z)dv_z \simeq \Omega \frac{2}{\pi v_D^4} v_z^3 \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) dv_z \tag{2.25}$$

となる。この式は、孔から漏れ出た原子のうち、速度の  $z$  成分が  $v_z \sim v_z + dv_z$  スリットを通過する確率と解釈できる。したがって、スリット 2 を通る流量の速度分布は  $q_a f_z^B(v_z)$  で計算できる。速度  $v_z$  について積分すれば原子ビームの流量  $q_b$  が得られ、

$$q_b = \frac{q_a \Omega}{\pi} = \frac{n_o \bar{v} A_a \Omega}{4\pi}, \tag{2.26}$$

である。

次節で述べるように、本実験ではスリットの幅と長さはスリット間の距離よりも十分小さいから、 $\Omega$  はスリットの面積とスリット間距離から計算できる。また、 $200^\circ\text{C}$  に温めたオーブン内の  $^{85}\text{Rb}$  の蒸気密度を、文献 4 から  $n_o = 9 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$  とすると、原子ビームの流量は  $q_b = 9 \times 10^{10} \text{ s}^{-1}$  となる。

### 2.1.2 真空系

図 2.2 に本散乱実験で使用した真空系を示す。

図 2.2 に示した真空系にはイオンポンプと粗引き用のターボ分子ポンプが接続されていて、真空槽内の圧力を  $10^{-5}$  Pa 以下にできる。真空系は大きく分けて、ルビジウム原子ビームを作るビーム生成部、原子ビームが散乱されるメインチャンバーの二つで構成されている。両者の間にはゲートバルブを設置し、メインチャンバーを真空に保ったままビーム生成部を切り離すことができる。

まずビーム生成部から説明する。ルビジウム原子ビーム源としては市販のルビジウム (Rb) アンブルを使用した。このアンブルは不活性ガスが封入された状態で購入でき、中には自然存在比 ( $^{85}\text{Rb} : ^{87}\text{Rb} = 0.72 : 0.28$ ) のルビジウム同位体が封入されている。Rb アンブルはベローズ内に入れてあり、ベローズを曲げることで真空中でアンブルを割れる。アンブルの入ったベローズは水冷ジャケットの

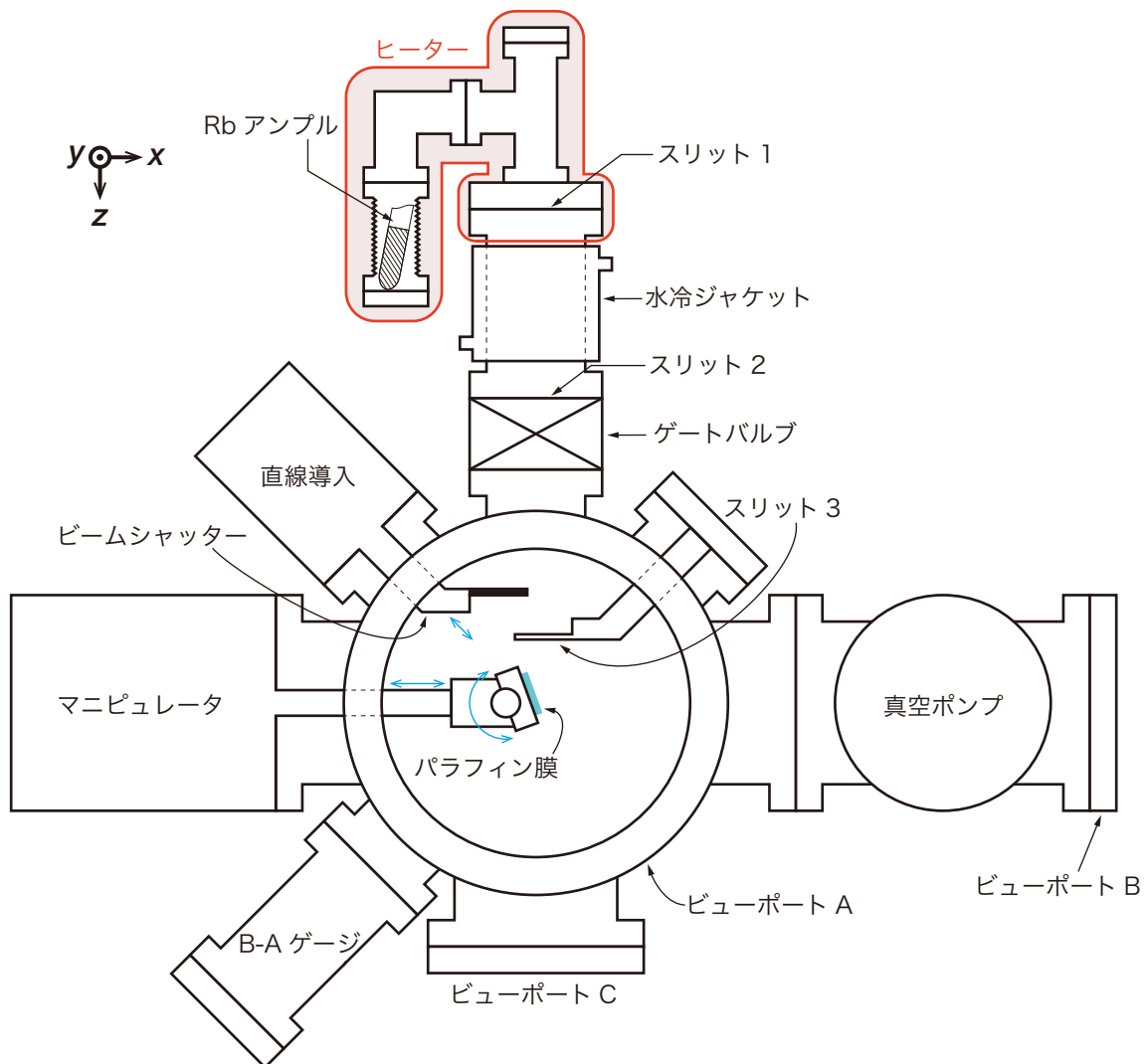


図 2.2 散乱実験の真空系

ついたニップル管（水冷ニップル）につながっていて、ニップル管との間にはスリット 1 が設置してある。水冷ニップルとゲートバルブの間にはスリット 2 が設置されていて、オープンから漏れ出た原子をコリメートする。原子オープンは図 2.2 中の赤枠で示した部分に対応し、実験の際にはヒーターで温めてルビジウム蒸気圧を高くする。水冷ジャケットに冷却水を通して、原子オープン以外の箇所が温まらないようにしている。

原子ビームとスリットについて、図 2.3 でより詳しく説明する。スリット 1 とスリット 2 には光学実験用のエアースリットを用いた。エアースリットの寸法は、図 2.3 中に示した座標系で、 $x$  方向で  $0.1\text{ mm}$ 、 $y$  方向で  $3\text{ mm}$ 、厚み ( $z$  方向) は  $0.01\text{ mm}$  である。スリット 1 とスリット 2 は冷却ニップルの両端に位置しており、両者の間隔は  $100\text{ mm}$  である。スリット 1 から漏れ出た Rb 原子は大部分が冷却ニップルの壁面に衝突するが、壁面が冷却されているため、衝突した原子は壁面に吸着したまま脱離しないとする。すると、スリット 1 とスリット 2 を衝突なしに通過してきた原子のみがメインチャンバー内に入る。

また、 $y$  方向の速度分布は、式 (2.21) より、図 2.4 中の赤線で表せる。後述するハイパーファイン偏極測定の際には  $y$  方向に進むレーザー光で原子ビームをハイパーファイン偏極する。用いるレーザー光の周波数広がり  $\Delta\nu$  は  $1\text{ MHz}$  程度と Rb  $D_2$  線の自然広がり ( $\approx 6\text{ MHz}$ ) よりも小さい。そのため、ドップラー効果によって、このレーザー光に共鳴する原子は  $-5\text{ m/s} \leq v_y \leq 5\text{ m/s}$  の速度を持つ原子に限られる。したがって、ハイパーファイン偏極されない原子が原子ビーム中に存在することになる。パラフィン表面での Rb 原子の散乱のされ方によっては、入射原子ビームの偏極度の速度依存性が散乱原子の偏極度の速度依存性に反映されることもあり得るため、入射原子ビームの偏極度はどの速度においても均等にしたい。そのため本実験では、スリット 3 で  $y$  方向の速度分布の幅を小さくすることにした。

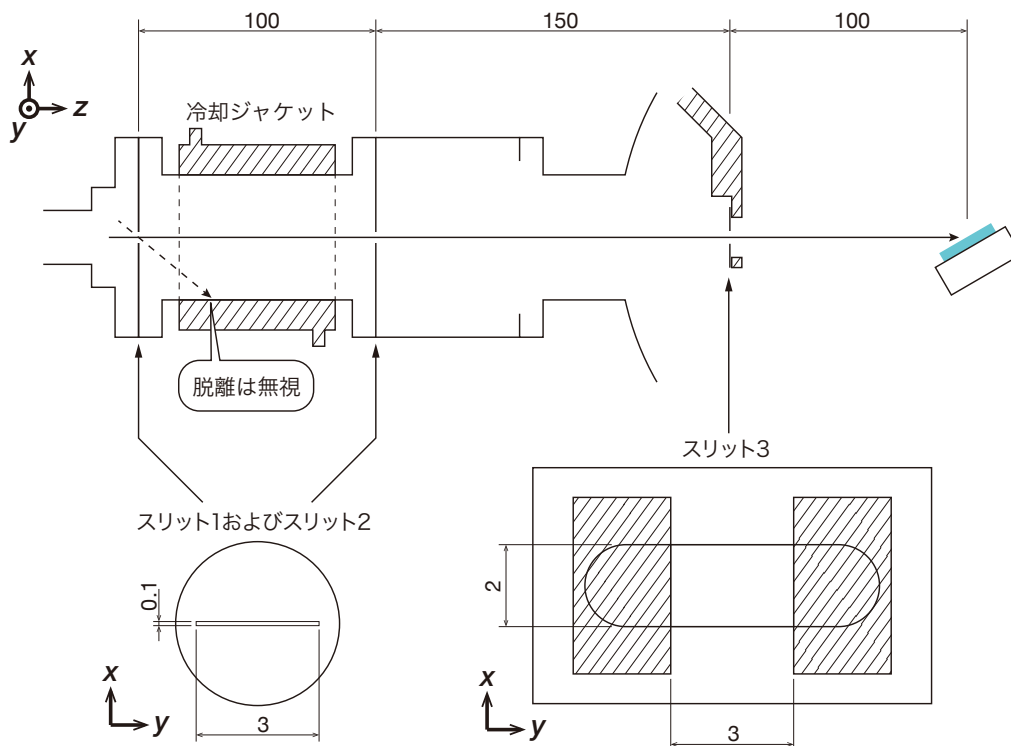


図 2.3 原子ビームスリットの配置.

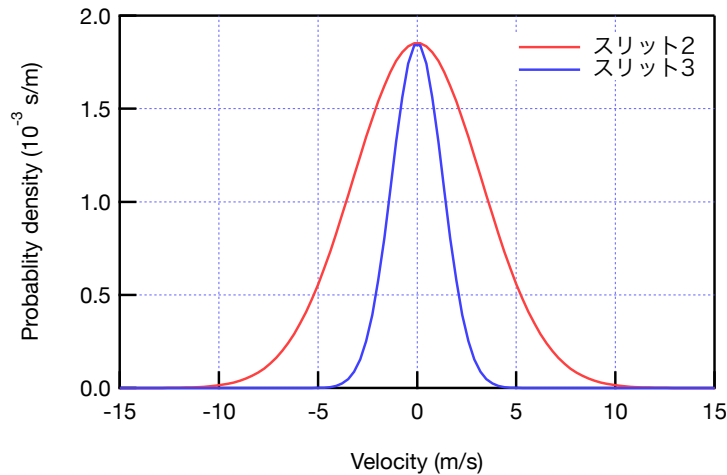


図 2.4 スリット 2 およびスリット 3 を通過した原子の  $y$  方向の速度分布.

スリット 3 は図 2.3 に示すような長方形のスリットである。厚さ 1 mm のアルミ板に開いた 2 mm 幅の長丸穴の上に、3 mm 間隔でカバーガラスを設置して作製した。スリット 2 からの距離はおよそ 150 mm であり、スリット 3 を通過する原子の  $y$  方向の速度分布を計算すると図 2.4 中の青線で示す分布になる。スリット 3 を通過した原子の  $y$  方向の速度分布は  $-5 \text{ m/s} \leq v_y \leq 5 \text{ m/s}$  に収まっているから、上述のレーザー光で全ての速度成分の原子を偏極できる。第 2.1.1.1 項で述べたようにビーム広がり計算すると、 $x$  方向の広がり  $\theta_{sx} = 0.1/100 = 1 \text{ mrad}$ 、 $y$  方向の広がり  $\theta_{sy} = 3/(100 + 150) = 12 \text{ mrad}$  となる。

スリット 1,2 はごく細い長方形だから、互いの向きを合わせることが重要である。本実験では、真空系下方のビューポート C からレーザーポインターの光をスリット 1,2 に入射して、回折した光の回折パターンを見て向きを調整した。

スリット 3 で更にコリメートされた原子ビームは、スリット 3 からおよそ 100 mm 下流のパラフィン膜に入射する。パラフィン膜がマウントされたステージはマニピュレータにつながれ、図 2.2 中の青い矢印で示した方向に直動および回転できる。

パラフィン膜（とスリット 3）の上流にはビームシャッターが設置されており、直線導入によって原子ビームを遮る位置まで移動できる。

### 2.1.3 レーザー光源

本実験ではレーザー光の吸収と、吸収に続いて原子から発せられる自然放出光を観測して原子を検出している。用いたレーザー光の光源とその周波数安定化について本項で詳しく説明する。

本実験では、レーザー光源として外部共振器型半導体レーザー（external cavity diode laser: ECDL）を用いた。ECDL の波長は  $^{85}\text{Rb}$  の  $D_2$  線に合わせて 780 nm に調整した。ECDL から出射する光は単一縦モードのガウシアンビームで、周波数幅は 1 MHz 程度である。 $^{85}\text{Rb}$  の自然幅が 6 MHz だから、レーザー光の周波数幅は自然幅よりも狭く、本実験において Rb 原子による光の吸収を考えるとときにはレーザー光を単色光と近似できる。

ECDL の周波数（波長）を原子の吸収線に高い精度で一致させるために、図 2.5 に示す周波数安定化



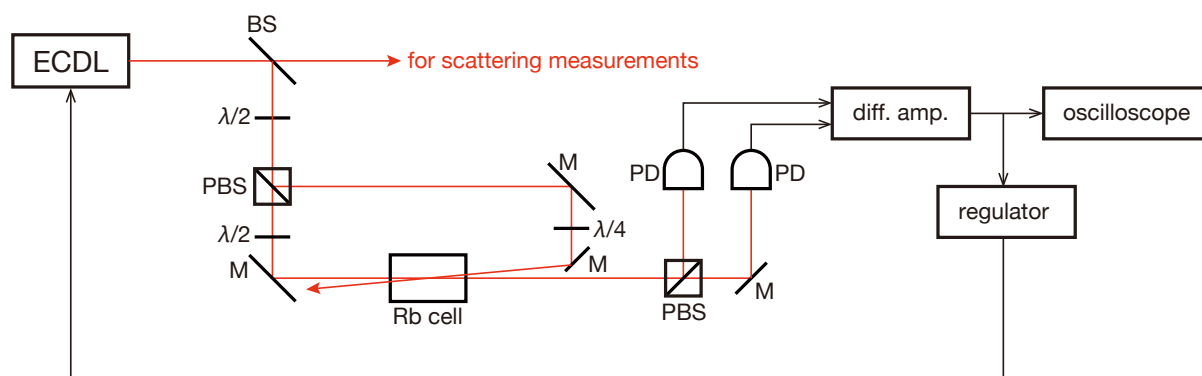


図 2.5 偏光分光を使った周波数安定化. ECDL: 外部共振器型半導体レーザー, BS: ビームサンプラー, PBS: 偏光ビームスプリッター, M: ミラー,  $\lambda/2$ : 1/2 波長板,  $\lambda/4$ : 1/4 波長板, Rb cell: ルビジウム蒸気セル, PD: フォトダイオード, diff. amp.: 差動アンプ.

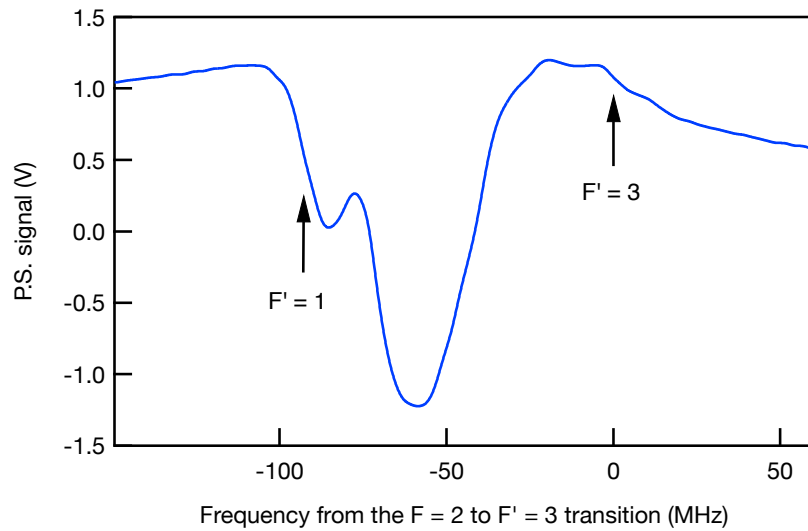
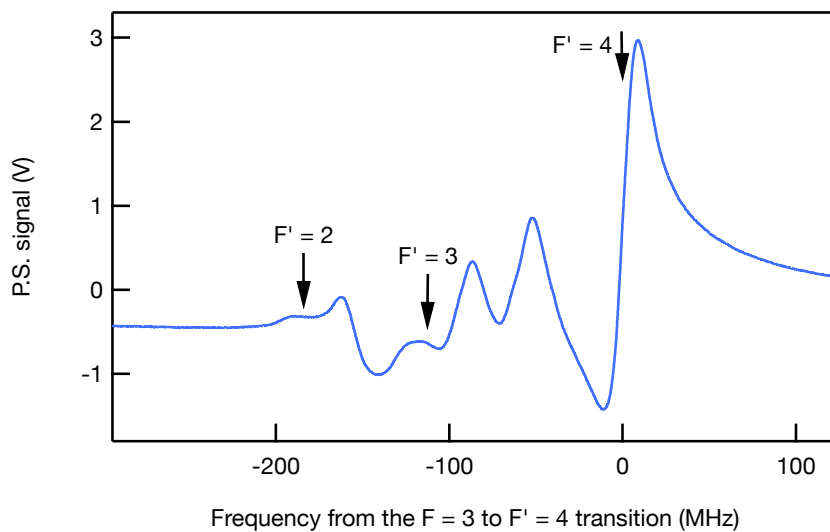
システムを構築した. ECDL からの出射光の一部をビームサンプラー (BS) で分けている. 分けられたレーザーは偏光分光 (polarization spectroscopy) と呼ばれる分光系で Rb 原子の分光に使われている. 偏光分光系では, 偏光ビームスプリッター (PBS) で更にポンプ光とプローブ光にわけられる. 図 2.5 ではプローブ光は PBS を透過した光を使っており, 直線偏光でルビジウム蒸気セル (Rb cell) に入射する. Rb cell を透過したプローブ光を PBS で垂直方向成分と水平方向成分に分割し, それぞれの強度をフォトダイオード (PD) で検出して差動アンプ (diff. amp.) で差分を取ると, プローブ光の偏光面の角度をモニターできる. 一方でポンプ光は,  $\lambda/4$  板を通して円偏光になった後に Rb cell に入射する. ポンプ光とプローブ光は対向して Rb cell に入射していて, Rb cell の中央でそれぞれのレーザーのパスが重なるようにしてある.

偏光分光の原理は第 3.3.1 節で説明している磁気光学回転であるが, 偏光分光の詳細は文献 44 や文献 45 に譲り, ここでは本実験での偏光分光のスペクトルを説明するに留める. 図 1.1 に示した通り,  $^{85}\text{Rb}$  は基底状態に  $\sim 3$  GHz 離れた超微細準位が 2 つ存在する. この基底状態の超微細分裂は励起状態の超微細分裂よりも著しく大きいから,  $^{85}\text{Rb}$  のスペクトルは  $F = 2$  からの遷移のスペクトル (図 2.6) と,  $F = 3$  からの遷移のスペクトル (図 2.7) の 2 つに大きく分けられる.

図 2.6 は本実験の偏光分光での  $F = 2$  からの遷移のスペクトルを示している. 横軸は  $F' = 3$  への遷移周波数を基準としたレーザー光周波数のずれ (離調) を表し, 縦軸は差動アンプ (diff. amp.) の出力を表している. 偏光分光で得られる信号は共鳴ピーク周りで分散型のピークを示す [44,45]. ピークが小さくて分かりにくいのが, 図 2.6 の 0 MHz での右下がりのスロープが  $F' = 3$  への遷移ピークの中心部である.  $F' = 2$  に由来するピークはクロスオーバーピークに埋もれてしまって見えないが,  $F' = 1$  のピークは比較的大きく見える.

図 2.7 は本実験の偏光分光での  $F = 3$  からの遷移のスペクトルを示し, 横軸は  $F' = 4$  への遷移周波数を基準としたレーザー光周波数のずれ (離調) を表している.  $F = 2$  からの偏光分光スペクトルに比べて,  $F = 3$  からのスペクトルはピークがよく分裂して見える.  $F' = 3, 2$  のピークを図 2.7 中の矢印で示してある.

図 2.6 および図 2.7 に示した偏光分光スペクトルにおけるピークのスロープを使って, 周波数が遷移周

図 2.6  $F = 2$  からの遷移の偏光分光スペクトル図 2.7  $F = 3$  からの遷移の偏光分光スペクトル

波数に一致するようにレギュレータ (regulator) で ECDL を制御できる。

#### 2.1.4 CCD カメラ

本実験では原子からの自然放出光を検出して Rb 原子を観測している。自然放出光は CCD (charge coupled device) カメラで検出した。使用した CCD カメラには冷却機能が備わっていて、長時間露光した際のノイズを小さくできる。本実験では、CCD カメラは  $0^{\circ}\text{C}$  に冷却して撮影した。また、本実験では焦点距離 25 mm で F 値が 1.4 のイメージングレンズで自然放出光を CCD 素子に投影した。

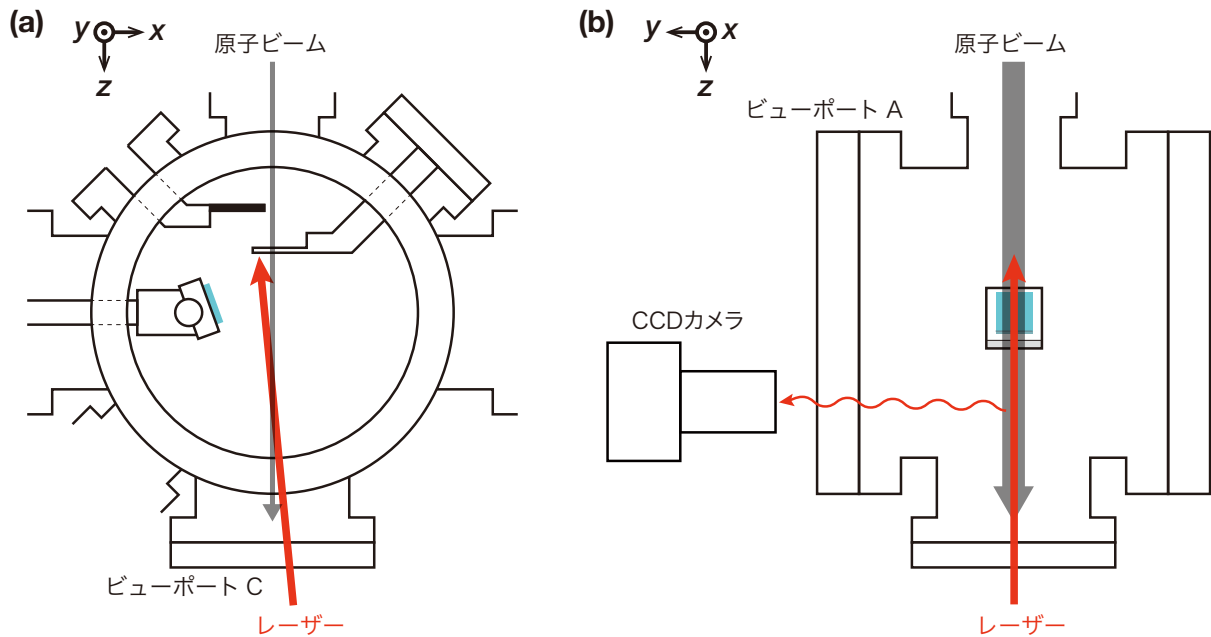


図 2.8 原子ビーム速度分布測定の概要. (a) はカメラから見た図, (b) はカメラ側面から見た図.

## 2.2 原子ビームの速度分布測定

本実験では原子オーブンを  $200^{\circ}\text{C}$  で温めて原子ビームをパラフィン膜に照射した. 同じ条件のときの原子ビームの進行方向の速度を測定した. この測定では, 図 2.8 に示すように, Rb に共鳴するレーザーをビューポート C から原子ビームに入射し, レーザーを吸収した原子からの自然放出光を CCD カメラで観測した. 本節では, 速度分布測定の原理を説明した後測定のセットアップと結果について述べる.

### 2.2.1 原子ビーム速度分布測定の原理

#### 2.2.1.1 光の吸収と放出

簡単のために 2 準位原子を考え, 共鳴する周波数の単色光が入射したときの光の吸収と放出について考える (図 2.9).

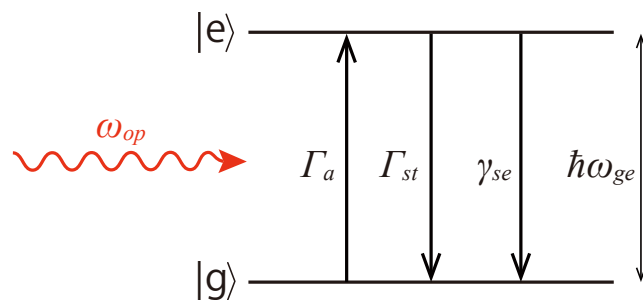


図 2.9 2 準位系による光の吸収・放出

図 2.9 に示したモデルでは固有状態として基底状態  $|g\rangle$  と励起状態  $|e\rangle$  が存在し、そのエネルギー差は  $\hbar\omega_{ge}$  で表される。ここで、 $h$  はプランク定数、 $\omega_{ge}$  はエネルギー差に対応する角周波数である。この 2 準位原子に角周波数  $\omega_{op}$  の単色光を入射する。光の角周波数  $\omega_{op}$  が遷移周波数  $\omega_{ge}$  に一致すると、吸収と誘導放出および自然放出が起こる。基底状態と励起状態の占有数をそれぞれ  $n_g, n_e$  とおくと、励起状態からの自然放出レート  $\gamma_{se}$  が十分大きい場合には次のようなレート方程式が立てられる。

$$\dot{n}_g = -\Gamma_a n_g + \Gamma_{st} n_e + \gamma_{se} n_e, \quad (2.27)$$

$$\dot{n}_e = \Gamma_a n_g - \Gamma_{st} n_e - \gamma_{se} n_e. \quad (2.28)$$

ここで、 $\Gamma_a$  は吸収のレートを、 $\Gamma_{st}$  は誘導放出のレートを表しており、

$$\Gamma_a = \Gamma_{st}, \quad (2.29)$$

である。また、

$$n_g + n_e = 1, \quad (2.30)$$

とする。

今考えているモデルでは、1 個の原子は 1 回の吸収で光子を 1 個吸収するから、ある単位体積で単位時間あたりに吸収される光子数  $n_a$  は原子数密度  $n_t$  を用いて、

$$n_a = \Gamma_a n_g n_t, \quad (2.31)$$

と書ける。

光を吸収して励起状態  $|e\rangle$  に遷移した原子は、誘導放出か自然放出によって光を放出して基底状態  $|g\rangle$  に脱励起する。誘導放出は入射している光との相互作用による状態遷移に伴う光の放出で、放出した光の進行方向は入射光と同じである。一方で自然放出された光の進行方向はランダムであり、自然放出レート  $\gamma_{se}$  は原子の吸収線ごとに固有の値を持つ。ある単位体積から単位時間あたりに自然放出される光子数  $n_{se}$  は、

$$n_{se} = \gamma_{se} n_e n_t, \quad (2.32)$$

で表せる。

式 (2.27) と式 (2.28) の定常状態を考えると、 $\dot{n}_g = \dot{n}_e = 0$  として、

$$n_e = \frac{\Gamma_a}{\gamma_{se} + \Gamma_a} n_g, \quad (2.33)$$

と計算できるから、

$$n_{se} = \frac{\gamma_{se} \Gamma_a}{\gamma_{se} + \Gamma_a} n_g n_t = \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_a} n_a, \quad (2.34)$$

が導ける。すなわち、原子団からの自然放出光の強さは基底状態の原子数に比例していることがわかる。

### 2.2.1.2 光のドップラー効果

上の第 2.2.1.1 項で導入した吸収レート  $\Gamma_a$  について、光のドップラー効果も考慮して考える。

上の2準位原子モデルで入射している単色光のパワーを  $I_{op}$  とする。すると、単位時間あたりに原子に照射している単位面積あたりの光子数  $\phi_{op}$  は、

$$\phi_{op} = \frac{I_{op}}{\hbar\omega_{op}}, \quad (2.35)$$

で計算できる。したがって、吸収レートは単位時間あたりに光子を1個吸収する確率と解釈して、

$$\Gamma_a = \phi_{op}\sigma_{op}, \quad (2.36)$$

と表せる。ここで  $\sigma_{op}$  は吸収断面積と呼ばれる量で面積の次元を持ち、物理的には1個の原子が光を吸収する確率を表す。

原子による光の吸収は光の周波数  $\omega_{op}$  が遷移周波数  $\omega_{eg}$  に一致したときに起こるから、吸収断面積  $\sigma_{op}$  は光周波数  $\omega_{op}$  に依存し、 $\sigma_{op} = \sigma_{op}(\omega_{op})$  と表す。入射している光が弱く、原子の衝突が無視できる場合には

$$\sigma_{op}(\omega_{op}) = \frac{\sigma_0 \left(\frac{\gamma_{se}}{2}\right)^2}{\left(\frac{\gamma_{se}}{2}\right)^2 + (\omega_{op} - \omega_{ge})^2}, \quad (2.37)$$

である。 $\sigma_0$  は吸収断面積のピークの値を示している。吸収断面積は光周波数  $\omega_{op}$  に対してローレンツ関数型の分布をしていて、その半値全幅は  $\gamma_{se}$  である。半値全幅が  $\gamma_{se}$  であることにも示されるように、式(2.37)で表される吸収断面積の広がりには自然放出に起因している。そのため、吸収線の広がりを意味するときには  $\gamma_{se}$  は自然幅と呼ばれる。

これまでの議論では暗黙のうちに原子は静止していると考えてきたが、原子が速度  $\mathbf{v}$  で運動する場合を考える。入射している光を  $z$  方向に伝播する平面波と考え、その波数ベクトルを  $\mathbf{k}_{op} = (0, 0, k_z)$  とする(図2.10)。このとき、ドップラー効果によって原子が感じる光の周波数  $\omega_f$  は光周波数  $\omega_{op}$  と異なり、

$$\omega_f = \omega_{op} - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v} = \omega_{op} - k_z v_z, \quad (2.38)$$

となる。今は光の進行方向を  $z$  軸正方向にとっているから、原子が光に対向して進むとき  $v_z$  は負となり、原子が感じる周波数は光の周波数よりも高くなる。一方で、原子が光の進行方向に運動しているときは、原子は光の周波数を低く感じる。

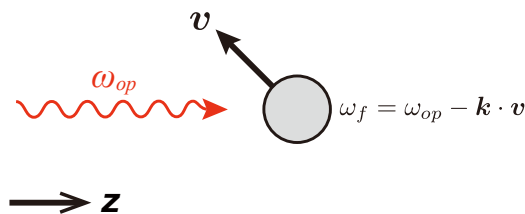


図2.10 速度  $\mathbf{v}$  で運動する原子と  $z$  方向に進行する光。

吸収断面積は原子の速度にも依存することとなり、 $\sigma_{op}(\omega_{op}) = \sigma_{op}(\omega_{op}, v_z)$  と書けて、

$$\sigma_{op}(\omega_{op}, v_z) = \frac{\sigma_0 \left(\frac{\gamma_{se}}{2}\right)^2}{\left(\frac{\gamma_{se}}{2}\right)^2 + (\omega_{op} - \omega_{ge} - k_z v_z)^2}. \quad (2.39)$$

### 2.2.1.3 原子ビームの流量とレーザー光を吸収する原子数

式 (2.31) と式 (2.34), 式 (2.36) から, 自然放出光の光子流量  $n_{se}$  は

$$n_{se} = n_{se}(\omega_{op}, \nu_z) = \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} \sigma_{op}(\omega_{op}, \nu_z) n_g n_t, \quad (2.40)$$

と書ける. 光強度が弱いときには  $n_g \simeq 1$  としてよく,

$$n_{se}(\omega_{op}, \nu_z) \simeq \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} \sigma_{op}(\omega_{op}, \nu_z) n_t, \quad (2.41)$$

と近似できる. ここで式 (2.41) 右辺の  $n_t$  は入射光と相互作用している原子数密度であった. 図 2.8 のように原子ビームに対してレーザーを照射したときの  $n_t$  を考える.

原子ビームはよくコリメートされていて角度広がり十分小さいとし, 原子ビーム中の原子は全て  $z$  正方向に運動しているとする. したがって原子ビームの速度分布は式 (2.18) の  $f_z^B(\nu_z)$  で表せ, 流量  $q_b$  も式 (2.26) で表せる. すると, 原子ビーム中で速度  $\nu_z \sim \nu_z + d\nu_z$  の原子がある面をある時間  $\Delta t$  で通過する数  $dN_b$  は

$$dN_b = q_b f_z^B(\nu_z) d\nu_z \Delta t, \quad (2.42)$$

となる. 他方で, 原子ビーム中の原子数密度を  $n_b$  とおくと,  $dN_b$  は

$$dN_b = n_b f_n(\nu_z) d\nu_z \cdot \nu_z \Delta t, \quad (2.43)$$

で計算できる. ここで  $f_n(\nu_z)$  は原子ビーム中で速度  $\nu_z \sim \nu_z + d\nu_z$  の原子が存在する割合を表す分布関数である.  $f_b(\nu_z)$  も似た分布関数だが,  $f_b(\nu_z)$  はある面を単位時間あたりに通過する原子の速度分布を表すことに注意されたい. 式 (2.42) と式 (2.43) から,

$$n_b f_n(\nu_z) \nu_z = q_b f_z^B(\nu_z), \quad (2.44)$$

が導ける.

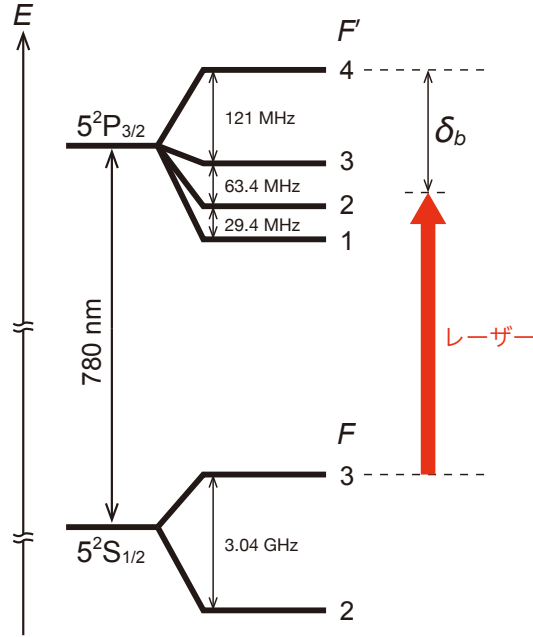
式 (2.41) における  $n_t$  は光と共鳴するような速度をもった原子の数密度と解釈すべきだから, 式 (2.41) と式 (2.44) から,

$$n_{se}(\omega_{op}, \nu_z) = \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} \sigma_{op}(\omega_{op}, \nu_z) \frac{q_b f_z^B(\nu_z)}{\nu_z}, \quad (2.45)$$

となる.

## 2.2.2 原子ビーム速度分布の測定方法

本測定では, 200°C に温めたオーブンからの原子ビームの速度分布を測定した. 図 2.8 に示すように, ビューポート C を通して原子ビームにレーザー光を入射し, ある速度成分の原子に光を吸収させて自然放出光を CCD カメラで観測した. 本測定では, ECDL の周波数は  $^{85}\text{Rb } D_2$  線の  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移に安定化した. 更に, 音響光学変調器 (acousto-optic modulator: AOM) を用いて ECDL から出た光の周波数を  $\delta_b$  だけ離調した (図 2.11). レーザー光は原子ビームに対向するように入射しているので, レーザー周


 図 2.11  $^{85}\text{Rb}$  エネルギー準位図と原子ビーム速度分布測定におけるレーザー周波数.

波数は赤色方向（周波数が低くなる方向）に離調している．レーザー光は直線偏光で，パワーは  $10\ \mu\text{W}$ ，ビーム径は  $\sim 2\ \text{mm}$ ，原子ビームとレーザーとのなす角はおおよそ  $2^\circ$  である．

$F = 3$  準位からは  $F' = 4, 3, 2$  の 3 つの準位に遷移が可能である．よって，3 つの遷移周波数に応じた 3 つの速度成分の原子で遷移が起こる．しかしながら，本測定においてはカメラで観察できる自然放出光は  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移に応じた速度成分からの自然放出光が支配的である． $F = 3 \rightarrow F' = 3, 2$  遷移に対応した速度成分からの自然放出光が弱い理由は次の通りである． $F' = 4$  に励起された原子は  $F = 3$  にしか脱励起しない．一方で， $F' = 3, 2$  に励起された原子は  $F = 3$  だけでなく  $F = 2$  にも脱励起する． $F = 2$  に脱励起した原子はいま入射しているレーザー光とは共鳴しないため，これらの速度成分の原子は次第に  $F = 2$  へと偏極されていき（ハイパーファイン偏極），レーザー光と共鳴しなくなる．したがって， $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移に対応した速度をもつ原子からの自然放出光が支配的となる．

$F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移のみを考えて，原子ビームからの自然放出光と速度分布の関係を考える．レーザー光の角周波数  $\omega_{op}$  は

$$\omega_{op} = \omega_{ge} + 2\pi\delta_b, \quad (2.46)$$

と書ける．ここで， $\delta_b$  は青色方向（周波数が高い方向）に離調したときを正にとっている．式 (2.46) を式 (2.39) に代入すると，

$$\sigma_{op}(\delta_b, v_z) = \frac{\sigma_0 \left(\frac{\gamma_{se}}{2}\right)^2}{\left(\frac{\gamma_{se}}{2}\right)^2 + (2\pi\delta_b - k_z v_z)^2}, \quad (2.47)$$

が得られる． $\delta_b$  離調したレーザー光と共鳴する速度成分の中心速度  $v_c$  は，式 (2.38) より，

$$v_c = \frac{2\pi\delta_b}{k_z} = \lambda_{op}\delta_b, \quad (2.48)$$

である．ここで  $\lambda_{op}$  はレーザー光の波長で， $\lambda_{op} = 2\pi/k_z$ ．

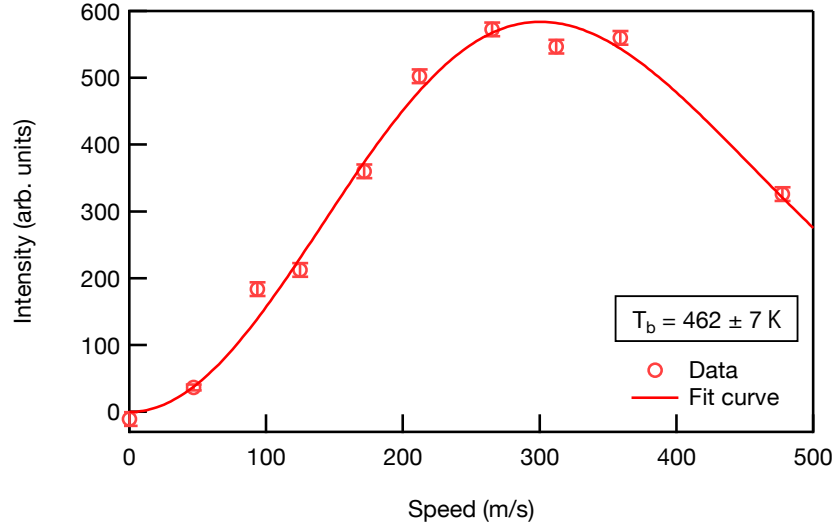


図 2.12 原子ビームの速さ分布.

原子からの自然放出光は本測定ではカメラで観測される。このとき式 (2.45) を速度  $v_z$  について積分した値に比例した信号がカメラから出力される。本測定では  $200^\circ\text{C}$  に温めたオープンからの原子ビームの速度分布を測定するから、式 (2.45) の積分においては  $f_z^B(v_z)/v_z$  は  $\sigma_{op}(\omega_{op}, v_z) = \sigma_{op}(\delta_b, v_z)$  に比べて極めて広い速度分布を持つ。よって、

$$\begin{aligned}
 & \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} q_b \int_0^\infty \frac{f_z^B(v_c)}{v_c} \sigma_{op}(\delta_b, v_z) dv_z \\
 & \simeq \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} q_b \frac{f_z^B(v_c)}{v_c} \int_0^\infty \sigma_{op}(\delta_b, v_z) dv_z \\
 & = \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} q_b \frac{\pi^2 r_e c f}{k_z} \cdot \frac{f_z^B(v_c)}{v_c} \\
 & = \frac{\gamma_{se}}{\gamma_{se} + \Gamma_{st}} \phi_{op} q_b \frac{\pi^2 r_e c f}{k_z} \frac{2}{v_D^2} \left(\frac{a}{2d}\right)^2 \cdot v_c^2 \exp\left(-\frac{v_c^2}{v_D^2}\right),
 \end{aligned}$$

と積分できる。今、上式で  $v_c$  以外の物理量は離調  $\delta_b$  に依らない。したがって、離調  $\delta_b$  を変えて（つまり選択している中心速度  $v_c$  を変えて）自然放出光の強さ  $I_{se}$  を測定すると、

$$I_{se} = I_{se}(v_c) \propto v_c^2 \exp\left(-\frac{v_c^2}{v_D^2}\right), \quad (2.49)$$

という依存性があるはずである。ここで  $v_D$  は原子ビームの温度によって決まる最確速さだから、この測定で原子ビーム温度も求められる。

### 2.2.3 Rb 原子ビームの速さ分布測定結果

レーザー周波数の離調  $\delta$  を変えて観測した自然放出光の強さを図 2.12 に示す。エラーバーは複数回測定したときの標準誤差を表している。式 (2.49) を実験データにフィットするとよく一致し（実線）、原子



ビーム温度  $T_b = 462 \pm 7 \text{ K}$  が得られた。これはオーブン温度の  $200^\circ\text{C} = 473 \text{ K}$  と矛盾しない。

## 2.3 試料

本節では散乱実験で使用したパラフィン膜の作製方法や膜の表面分析について述べる。パラフィン膜の作製方法や表面分析の結果を表 2.1 にまとめる。比較のため、パラフィン膜だけでなく市販のシリコンウェハー表面（表 2.1 中#1）での Rb 原子の散乱も測定した。シリコンウェハー表面は酸化被膜で覆われていて、Rb 原子が散乱される表面の物質は二酸化珪素 ( $\text{SiO}_2$ ) であると考えられる。

作製したパラフィン膜は散乱実験で使用された後に、原子間力顕微鏡 (atomic force microscope) で表面形状を、X 線回折 (X-ray diffraction) 装置でパラフィン分子の結晶性を測定した。#2 のパラフィン膜に関しては、散乱実験前後で表面形状を分析した。

表 2.1 散乱実験で使用した 4 種類の試料。成膜方法、Rb 原子を散乱する膜の材質、膜の基材、AFM で測定した表面粗さ (Ra)、XRD で測定した分子配向がまとめられている。#1 はパラフィン膜との比較のためのシリコン基板である。

	成膜方法	表面	基板	Ra (nm)	分子配向
#1	—	酸化被膜 ( $\text{SiO}_2$ )	Si	—	—
#2	ディッピング	テトラコンタン	Si/ $\text{SiO}_2$	2.6	垂直配向
#3	真空蒸着	テトラコンタン	ホウケイ酸ガラス	0.9	主にランダム
#4	真空蒸着	テトラコンタン	APS 単分子層	0.7	主にランダム

### 2.3.1 成膜方法

パラフィン膜は大きく分けて二種類の方法で作製した。一つはディッピング法、もう一つは真空蒸着法である。どちらの作製方法においても、使用したパラフィンにはテトラコンタン (tetracontane,  $\text{C}_{40}\text{H}_{82}$ , 純度 97% 以上) である。

#### 2.3.1.1 ディッピング法による成膜

ディッピング法は膜材の溶液あるいは融液に基板を浸し、引き上げた後に乾燥させて成膜する方法で、均一で平坦な膜を成膜できることが知られている。シリコンウェハーの酸化膜上に極めて滑らかなテトラコンタン膜をディッピング法で作製した報告もある [46]。その文献 46 を参考に、本実験でも同様の手順でシリコンウェハー上にディッピング法でテトラコンタンを成膜した。

シリコンウェハーは、30% 過酸化水素 ( $\text{H}_2\text{O}_2$ ) と 96% 濃硫酸 ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) の混合液 (体積比で  $\text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{SO}_4 = 1 : 3$ ) で 10 分間洗浄した。その後、純粋で数回すすぎ、窒素雰囲気下で乾燥させた。テトラコンタンはガラス容器に入れ、 $120^\circ\text{C}$  に温めたオーブンに入れて融かしておく。乾燥させたシリコンウェハーをオーブン内に導入し、テトラコンタン融液に浸漬させた。一定速度でシリコンウェハーを引き上げ、オーブンの温度を徐々に下げてテトラコンタン膜を成膜した。

### 2.3.1.2 真空蒸着法による成膜

真空蒸着法は，真空中で膜材を気化させて基板に堆積させる方法である．本実験では，ホウケイ酸ガラス上に真空蒸着でテトラコンタンを成膜した．また，ホウケイ酸ガラス上に作製した 3-aminopropyltrimethoxysilane (APS) の単分子層への真空蒸着によるテトラコンタン膜の成膜も行った．

ホウケイ酸ガラスは中性洗剤でこすり洗いした後，純水，アセトン，メタノールで超音波洗浄した．その後，窒素雰囲気下で乾燥させた．APS の単分子層を作製する場合には，更に UV オゾン処理を施し，APS を加え攪拌したトルエン（濃度:1 wt%）に 1 時間浸漬させる．浸漬後はトルエンで超音波洗浄を行って，窒素雰囲気下の 100 °C のオーブンで 1 時間加熱して APS の単分子層を形成した．

洗浄したホウケイ酸ガラス，あるいは APS 単分子層の上にテトラコンタンを真空蒸着した．蒸発温度は 300 °C，基板温度 30 °C~45 °C，圧力は  $1 \times 10^{-4}$  Pa~ $1 \times 10^{-3}$  Pa の条件で 45 分間蒸着した．

### 2.3.2 原子間力顕微鏡 (AFM) による表面形状測定

作製したパラフィン膜の表面形状を AFM で観察した．それぞれのパラフィン膜の AFM 像を以下に示す．AFM での観察領域は  $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$  で，AFM 像中の白線は  $1 \mu\text{m}$  のスケールを表している．

#2 の散乱実験前後の AFM 像を図 2.13，図 2.14 に示す．カラスケールは観測領域での平均高さからの高さ  $h$  を表している．散乱実験の前後で表面形状を観察している領域は異なるものの，図 2.13 と図 2.14 で表面の構造が変化していることが見てとれる．AFM 像のカラスケールが 1 桁程度異なることからわかるように，散乱実験後では表面の凹凸が小さくなっている．領域内で算出平均粗さ (Ra)

$$\text{Ra} = \frac{1}{A} \int_S |h| dS \quad (2.50)$$

を計算すると，散乱実験前で 24 nm だった Ra が散乱実験後には 2.6 nm であった．

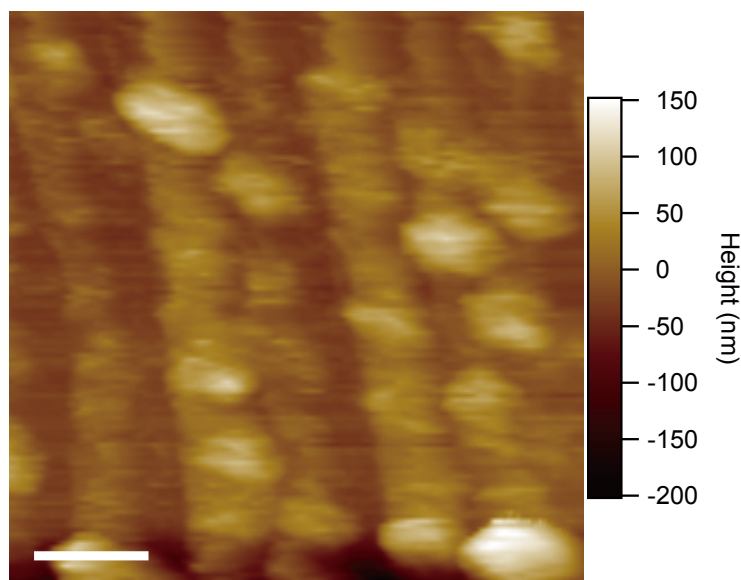


図 2.13 散乱実験前のパラフィン膜#2 の AFM 像

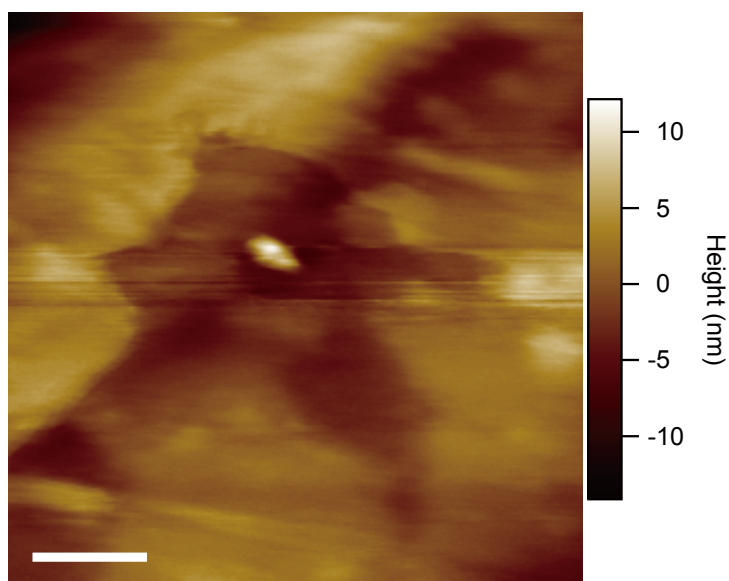


図 2.14 散乱実験後のパラフィン膜#2 の AFM 像

#2 と #3 の散乱実験後の AFM 像を図 2.15 と図 2.16 にそれぞれ示す。Ra は #2 で 0.9 nm, #3 で 0.7 nm であった。

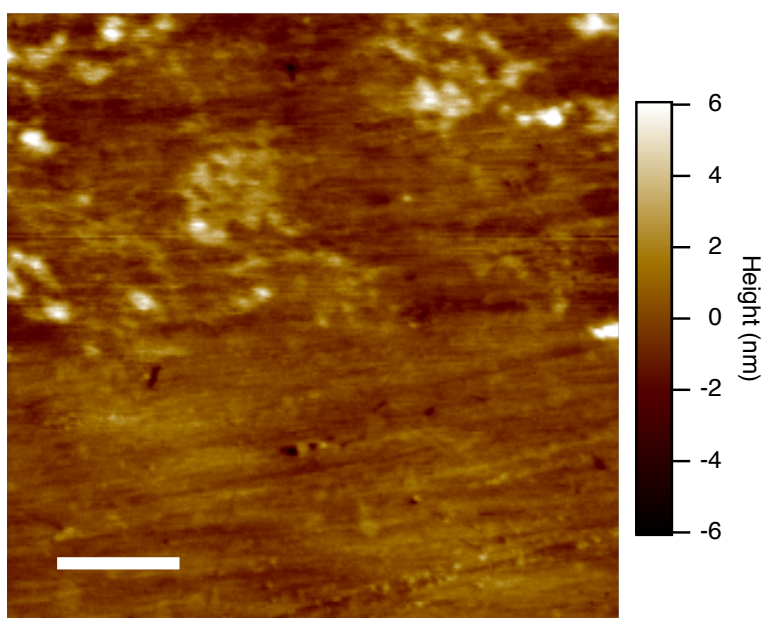


図 2.15 パラフィン膜#3 の散乱実験後の AFM 像

パラフィン膜#2,#3,#4 の散乱実験後の表面形状を比べると、#3 と #4 は形状が似ており、#2 は他の 2 つとは異なった構造であることがわかる。

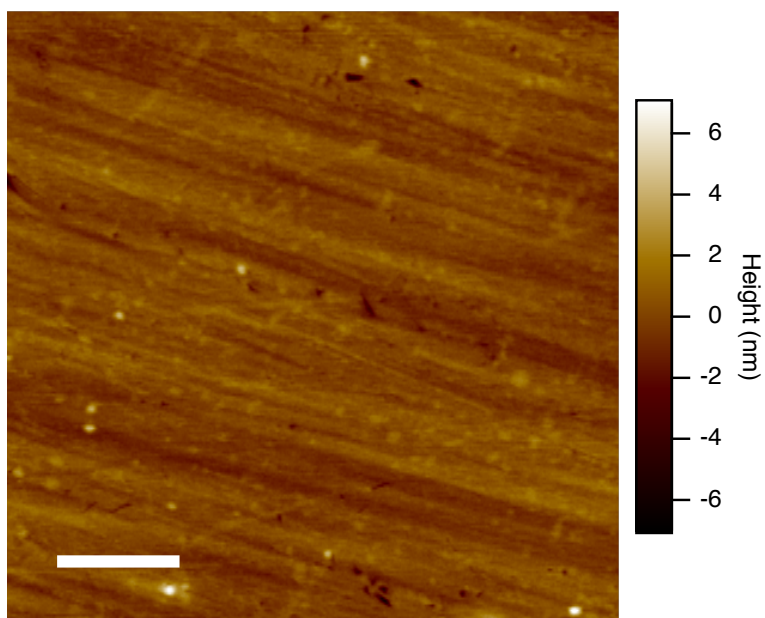


図 2.16 パラフィン膜#4 の散乱実験後の AFM 像

### 2.3.3 X線回折による結晶構造解析

パラフィン膜の結晶構造をX線回折(x-ray diffraction: XRD)で調べた。使用したX線は銅の特性X線Cu  $\alpha$  線で、波長  $\lambda_x = 0.15418$  nm である。

図 2.17 にパラフィン膜#2 のX線回折プロファイルを示す。横軸は回折角  $2\theta$ 、縦軸は回折X線の強度を表している。ディッピング法でシリコウエハー上に成膜した#2 では、 $2\theta \leq 10^\circ$  の領域で周期的なピークが現れている。テトラコンタンは飽和炭化水素化合物の一種であり、長い鎖状に  $\text{CH}_3$  がつながった構造を持っている。この構造を考慮すると、#2 のX線回折プロファイルに現れた小角領域の周期的なピークは、基板の垂直方向に配向したテトラコンタン分子による回折のピークであると考えられる [47]。小角領域の回折プロファイルを図 2.17 に拡大して挿入した。周期的に現れているピークに挿入図に示すように a から f まで名前をつけ、それぞれのピークの回折角を求めた。回折角を表 2.2 にまとめた。

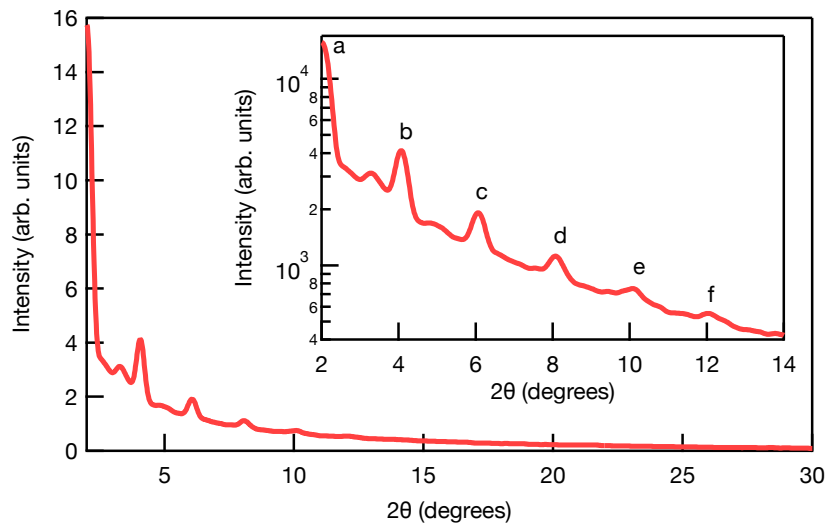


図 2.17 パラフィン膜#2 (ディッピング) の XRD スペクトル。

表 2.2 ピーク a からピーク f の回折角とミラー指数

	$2\theta(^{\circ})$	(h k l)
a	2.0	(0 0 1)
b	4.1	(0 0 2)
c	6.1	(0 0 3)
d	8.1	(0 0 4)
e	10.1	(0 0 5)
f	12.0	(0 0 6)

垂直配向を考えているから (00l) のミラー指数を a から f のピークに表 2.2 に示したように割り当てて

みる。この場合、ミラー指数は  $l$  のみで表される。1 次の回折のみを考えると、結晶に入射した X 線が回折される角度  $\theta$  はブラッグの条件より、

$$\lambda_x = 2 \frac{d_c}{l} \sin \theta, \quad (2.51)$$

と考えられる。ここで  $d_c$  は考えている結晶構造の面間隔である。よって、

$$\sin \theta = \frac{\lambda_x l}{2d_c}, \quad (2.52)$$

となる。

割り当てた指数  $l$  に対する回折角の正弦をプロットしたものが図 2.18 である。  $\sin \theta$  が  $l$  に綺麗に比例していることがわかる。比例直線をフィットすると面間隔  $d_c = 4.4 \text{ nm}$  が得られた。

テトラコンタン ( $\text{C}_{40}\text{H}_{82}$ ) は直鎖の飽和炭化水素化合物 (アルカン) である。炭素原子と炭素原子は  $sp^3$  混成軌道によって結合されており、その結合長は  $1.54 \text{ \AA}$  とよく知られている。また、図 2.19 に示すように C-C 結合と C-C 結合のなす角は  $109^\circ$  である。したがって、テトラコンタン分子の長さは  $4.9 \text{ nm}$  程度と推測され、XRD によって得られた面間隔  $a_c = 4.4 \text{ nm}$  と近い。測定した面間隔との差異は、分子が完全に表面垂直方向に配向しているのではなくて斜めに配向していること示していると考えられる。上

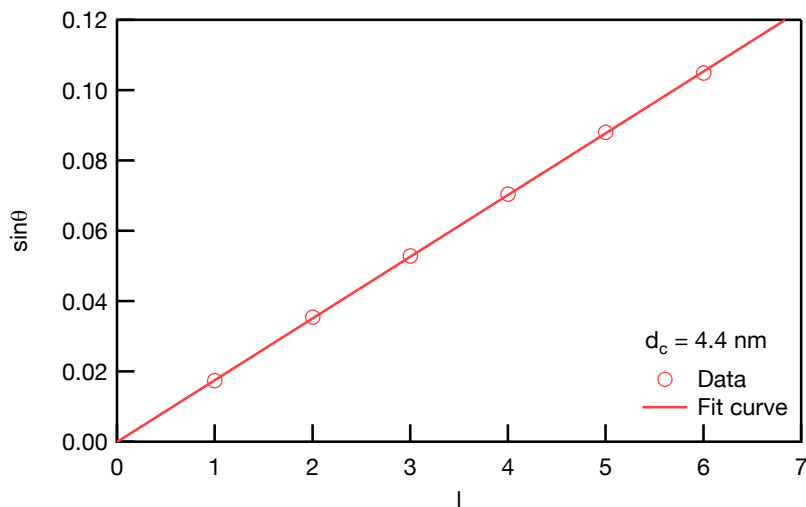


図 2.18 回折角とミラー指数の関係。

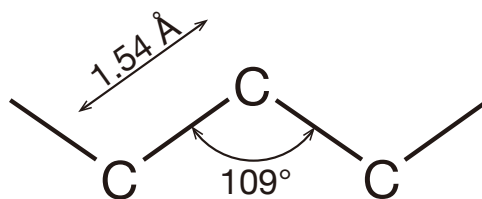


図 2.19 アルカンの分子構造。

述のようにテトラコンタン分子の長さを 4.9 nm とすると、分子鎖の表面垂直からの角度は  $26^\circ$  程度と計算できる。

図 2.20 と図 2.21 にパラフィン膜#3 と#4 の回折プロファイルをそれぞれ示す。#3、#4 のプロファイルでは、#2 のプロファイルでのピークに比べて回折ピークの大きさが小さい。これは、テトラコンタンの結晶性が#2 よりも悪く、結晶子の配向がランダムであることを示唆している。またピークが  $2\theta$  が  $20^\circ$  から  $25^\circ$  の比較的大きな角度の領域に現れている。これら広角領域のピークは基板に平行に配向した分子からの回折ピークだと考えられる [47]。なお、 $15^\circ \leq 2\theta \leq 30^\circ$  の範囲の幅広いピークはガラス基板由来の信号だと考えられる。ピークを拡大したものが各グラフに挿入してある。#3 では小角領域にも小さなピーク

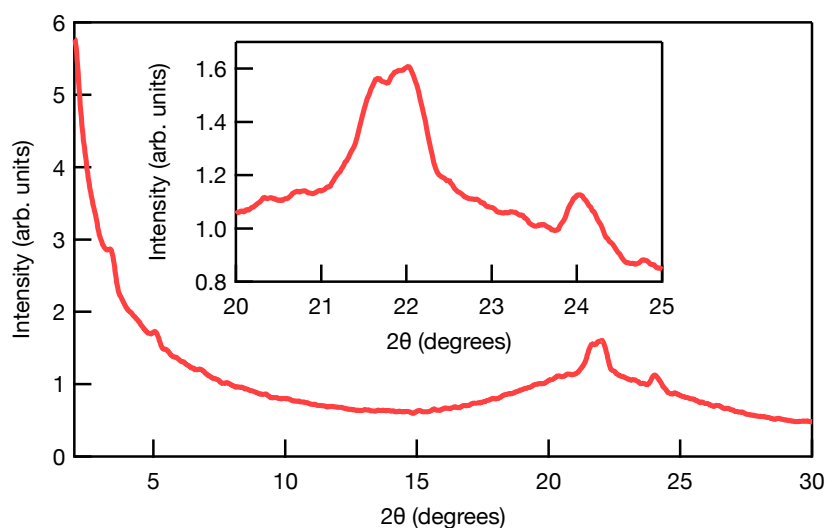


図 2.20 パラフィン膜#3（真空蒸着 on ガラス基板）の XRD スペクトル。

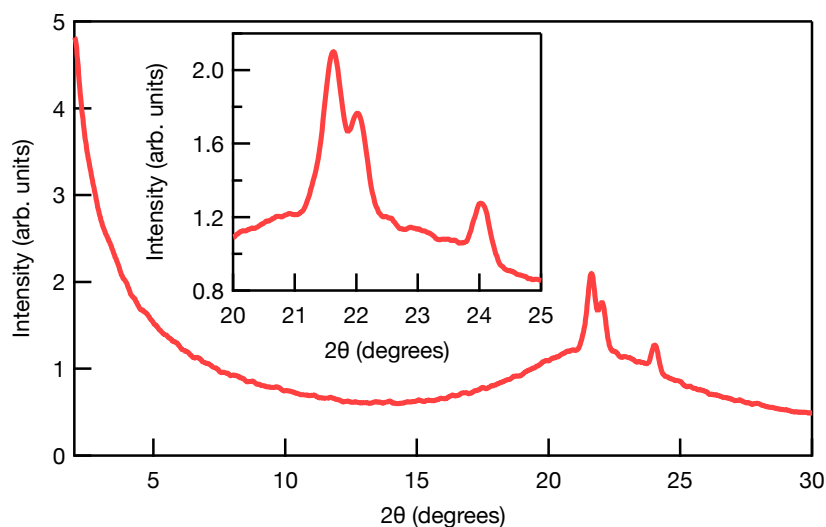


図 2.21 パラフィン膜#4（真空蒸着 on APS）の XRD スペクトル。



クが現れている。以上より、#3 のパラフィン膜の結晶子は主にランダムに配向しており、平行配向および垂直配向の結晶も存在する。#4 においても結晶子は主にランダムに配向していて、平行配向の結晶も存在する。

## 2.4 パラフィン表面での散乱の測定

第2.3節で述べた膜#1-4について、次の3種類の測定を行なった：

1. 散乱原子のハイパーファイン偏極度測定；
2. 原子ビームの入射面内 ( $x$ - $z$  面内) の散乱角  $\theta$  に対する散乱強度の依存性測定 (角度分布測定) ；
3. 散乱原子の  $y$  方向の速度分布の測定。

### 2.4.1 ハイパーファイン偏極度測定

ハイパーファイン偏極度測定の光学系を図2.22に示す。ハイパーファイン偏極度測定では、2つのECDLを使った。どちらのECDLも偏光分光スペクトルを利用して周波数安定化をしてある。

ECDL1からの光は、入射原子ビームをハイパーファイン偏極するためのポンプ光として用いた。ポン

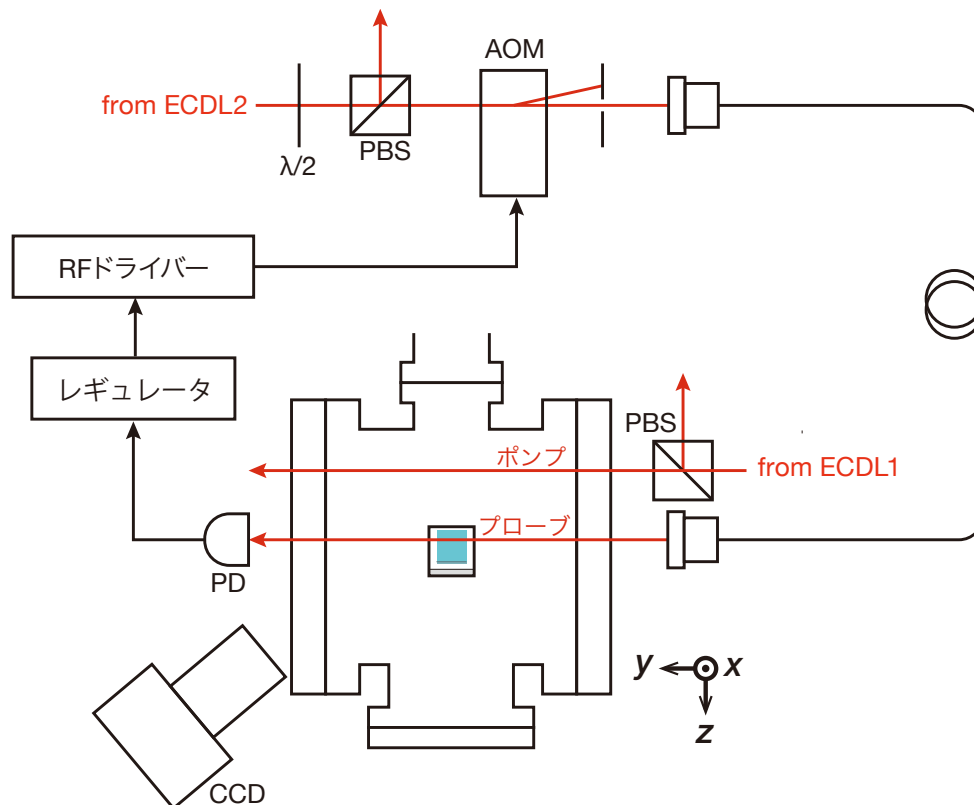


図2.22 ハイパーファイン偏極の光学系。  $\lambda/2$ : 1/2 波長板, PBS: 偏光ビームスプリッター, AOM: 音響光学変調器, PD: フォトダイオード。



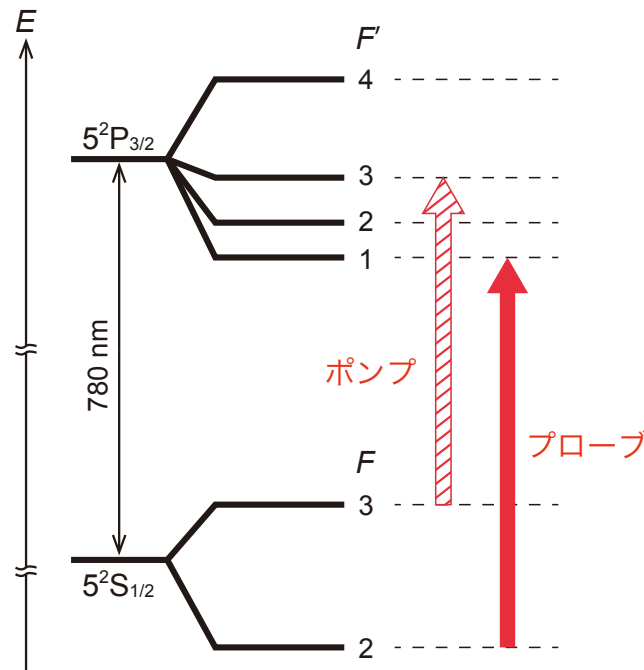


図 2.23 ポンプ光とプローブ光の周波数.

プローブ光も PBS で直線偏光にした後に、パラフィン膜の上流で原子ビームに入射する。ポンプ光の周波数は  $F = 3 \rightarrow F' = 3$  遷移に合わせた (図 2.23)。  $F' = 3$  からは  $F = 3$  と  $F = 2$  の準位に脱励起するから、次第に  $F = 2$  に占有数が偏る (ハイパーファイン偏極)。

ハイパーファイン偏極した原子はパラフィン膜に入射し、散乱された原子にプローブ光を入射する。プローブには ECDL2 からの光を用いた。プローブ光は PBS を通った直線偏光を AOM に通し、回折しない光をファイバーに入射している。ファイバーを通った光はパラフィン膜の近くで散乱角  $\theta \sim 0^\circ$  の位置に入射し、その後フォトダイオードで検出される。フォトダイオードの出力をモニターして、AOM を駆動する RF ドライバーにレギュレータからフィードバックをかけ、プローブ光パワーを安定化している。プローブ光の周波数は  $F = 2 \rightarrow F' = 1$  の遷移に合わせた (図 2.23)。  $F' = 1$  からは  $F = 2$  にしか脱励起しないから、ハイパーファイン偏極せずに  $F = 2$  の占有数をプローブできる。

パラフィン膜表面での散乱によってハイパーファイン偏極が緩和されれば  $F = 2$  の占有数が減少し、プローブ光に誘起される自然放出光の強度が減少する。ハイパーファイン偏極したときの自然放出光強度  $F_p$  と、ハイパーファイン偏極していないときの自然放出光強度  $F_0$  を比べて、散乱原子がどの程度ハイパーファイン偏極しているか、すなわち散乱原子のハイパーファイン偏極度を測定できる。本実験では  $F_p, F_0$  から

$$\Delta_s = \frac{F_p - F_0}{F_0}, \quad (2.53)$$

という量を求め、ハイパーファイン偏極度の目安とした。また、パラフィン膜に入射する前の原子に対しても同様の測定と解析を行って  $\Delta_b$  を求めた。今調べたいのはパラフィン膜の緩和防止性能だから、散乱

前後での偏極度の変化を  $\Delta_s$  と  $\Delta_b$  の比  $P_{hf}$

$$P_{hf} = \frac{\Delta_s}{\Delta_b}, \quad (2.54)$$

を求めてハイパーファイン偏極度がどれくらい緩和されずに散乱されたかを評価した。

ここで、 $\Delta_s$  および  $\Delta_b$  の物理的な意味を考察する。 $F = 3$  と  $F = 2$  の占有数をそれぞれ  $n_3, n_2$  とおき、原子数は一定だから  $n_3 + n_2 = 1$  とする。 $F = 3$  と  $F = 2$  では縮退している磁気副準位の数異なり、縮重度  $g_3, g_2$  はそれぞれ  $g_3 = 2(I + 1/2) + 1 = 7$ ,  $g_2 = 2(I - 1/2) + 1 = 5$  である ( $^{85}\text{Rb}$  の核スピン  $I = 5/2$ )。熱平衡状態では各磁気副準位の占有数が等しいから、 $n_3$  と  $n_2$  は

$$\frac{n_3}{g_3} = \frac{n_2}{g_2} \quad (2.55)$$

となる。したがって、ハイパーファイン偏極していないとき（熱平衡状態）の  $F = 2$  の占有数  $n_2^0$  は

$$n_2^0 = \frac{g_2}{g_3 + g_2} = \frac{I}{2I + 1} = \frac{5}{12} \quad (2.56)$$

と計算できる。プローブ光で誘起される自然放出光の強さは  $F = 2$  の占有数に比例するから、 $\Delta_s$  は

$$\Delta_s = \frac{n_2 - n_2^0}{n_2^0} \quad (2.57)$$

$$= -\frac{1}{I} \{I \cdot n_3 - (I + 1) \cdot n_2\} \quad (2.58)$$

$$= -\frac{1}{2I} \{(2I + 1)(n_3 - n_2) - 1\} \quad (2.59)$$

と変形でき、ハイパーファイン準位の占有数の差  $n_3 - n_2$  を表していることがわかる。

また、 $\Delta_s$  が電子スピン  $\mathbf{S}$  と原子核スピン  $\mathbf{I}$  との相互作用を表す演算子  $\mathbf{S} \cdot \mathbf{I}$  の期待値  $\langle \mathbf{S} \cdot \mathbf{I} \rangle$  に比例することも次のように示せる。

$$\langle \mathbf{S} \cdot \mathbf{I} \rangle = \left\langle \frac{1}{2} (\mathbf{F}^2 - \mathbf{I}^2 - \mathbf{S}^2) \right\rangle \quad (2.60)$$

$$= \frac{n_3}{2} \left\{ \left( I + \frac{1}{2} \right) \left( I + \frac{3}{2} \right) - I(I + 1) - \frac{3}{4} \right\} + \frac{n_2}{2} \left\{ \left( I - \frac{1}{2} \right) \left( I + \frac{1}{2} \right) - I(I + 1) - \frac{3}{4} \right\} \quad (2.61)$$

$$= \frac{I}{2} n_3 - \frac{I + 1}{2} n_2 \quad (2.62)$$

$$= -\frac{I}{2} \Delta_s. \quad (2.63)$$

## 2.4.2 角度分布測定

角度分布測定の光学系を図 2.24 に示す。角度分布測定では、ECDL の周波数を  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  の遷移に安定化する。ECDL からの光は PBS で直線偏光にされた後に偏光保持ファイバーに入射する。偏光保持ファイバーから出射した光は図 2.2 のチャンバーにビューポート A を通って入り、パラフィン膜の近くで散乱原子に照射される。CCD カメラはレーザー光の進行方向の斜め下からパラフィン膜の方を向

いている。偏光保持ファイバーの出射ポートは上下に移動できるステージに固定されていて、レーザーの入射位置を上下にスキャンできる。CCDカメラを長時間露光し、その間にプローブ光位置をスキャンすると様々な角度に散乱した原子からの自然放出光を撮影できる。レーザーのパワーは  $200\mu\text{W}$  で測定を行った。パラフィン膜垂直方向から測った原子ビームの入射角はおよそ  $70^\circ$  にした。

図 2.25 は CCD カメラの露光時間が 228 s で実際に撮影した自然放出光画像である。プローブ光を入射している位置（自然放出光を発している位置）と原子ビームおよびパラフィン膜の位置関係も図 2.25 に示している。原子ビームの進む方向を  $z$  方向、レーザーの進む方向を  $y$  方向とした。原子ビームの  $x$  方向の幅  $w_x = 0.5\text{ mm}$  で、 $y$  方向に伝播するプローブ光は Rb 原子が散乱される点から  $x$  方向に  $\Delta x = 3.9\text{ mm}$  離れた場所に入射した。レーザーによって誘起された自然放出光画像の中央で  $z$  軸に沿って強度プロファイルを取ると、上段に示す曲線になる。縦軸と曲線に色が自然放出光の強度を表し、曲線の色は自然放出光画像の色と同じカラースケールで表されている。プローブ光と散乱点との距離  $\Delta x$  は固定されているから、自然放出光強度  $I_f$  の  $z$  方向の依存性  $I_f(z)$  から散乱強度の散乱角度分布  $s(\theta)$  を導ける。

簡単のため  $x$ - $z$  平面内の運動のみを考えて、自然放出光プロファイル  $I_f(z)$  と散乱角度分布  $s(\theta)$  との関係を示す。まず、原子ビームがパラフィン膜表面のある一点で散乱され、原子が散乱角  $\theta$  の方向に流量密度  $q_s$  を持つとする。 $q_s$  は散乱角  $\theta$  だけでなく散乱点からの距離  $r$  にも依存し  $q_s = q_s(r, \theta)$  と書ける。散乱点から見て  $\theta \sim \theta + d\theta$  に見込む長さは  $rd\theta$  だから、原子が散乱角  $\theta \sim \theta + d\theta$  の範囲に散乱される原子

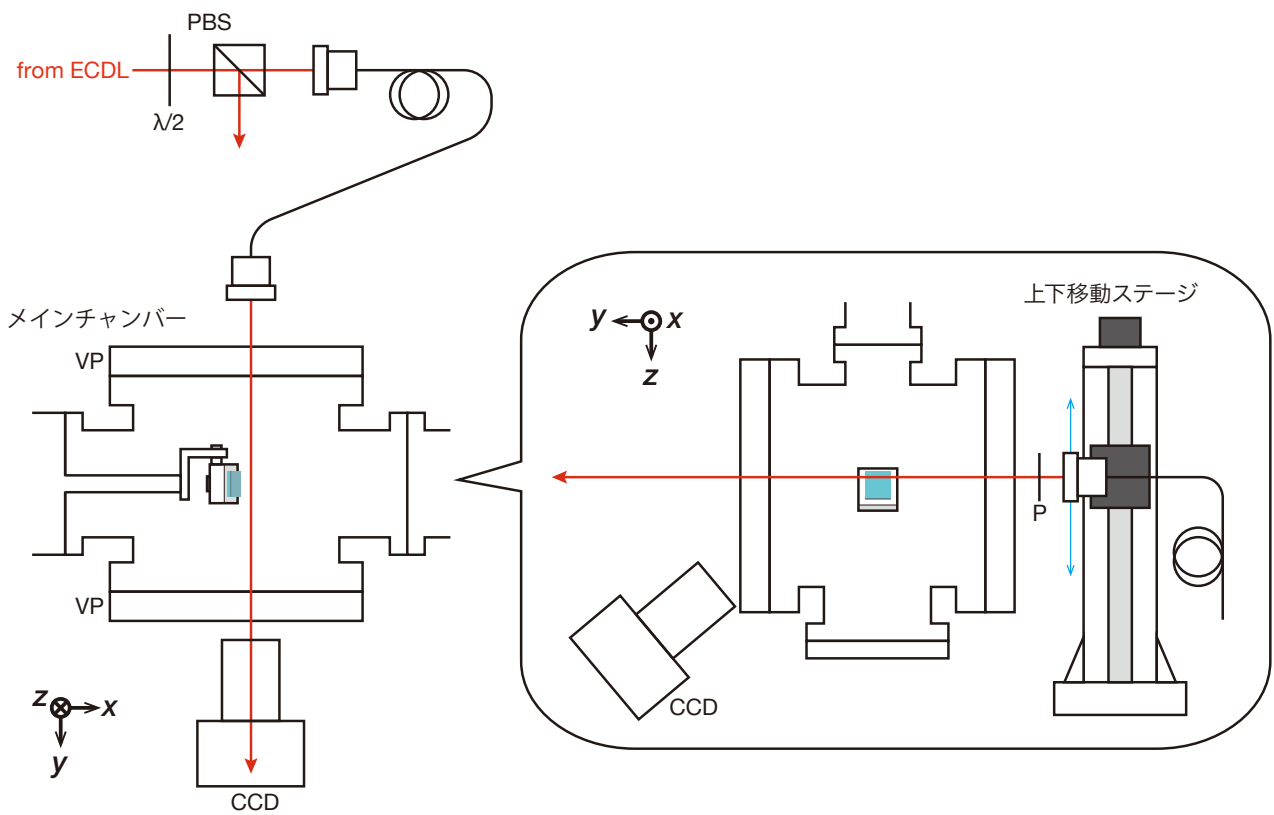


図 2.24 角度分布測定的光学系

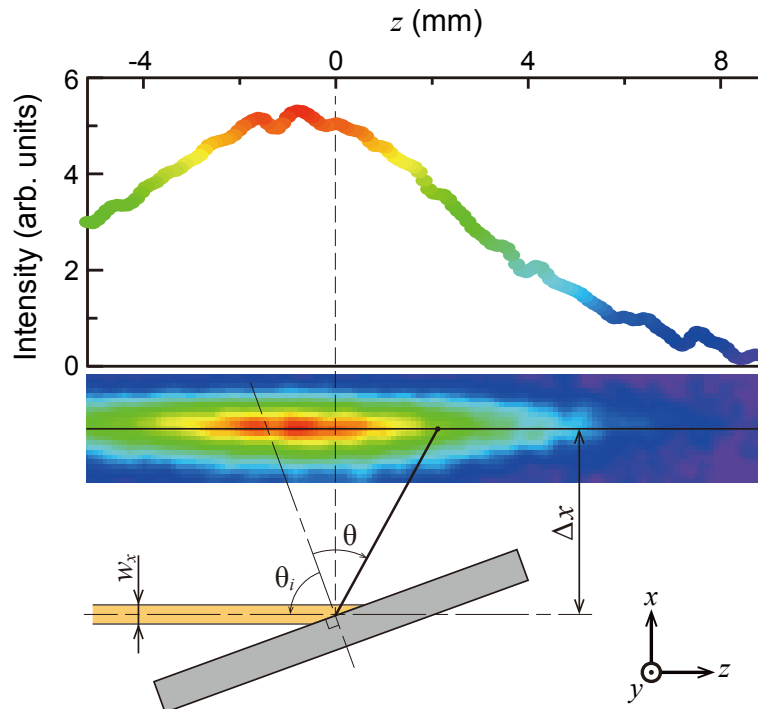


図 2.25 角度分布測定の例.

数を  $s(\theta)d\theta$  と表すと

$$q_s(r, \theta)r d\theta = s(\theta)d\theta, \quad (2.64)$$

と考えられる. 位置  $(r, \theta)$  での自然放出光強度  $I_f(r, \theta)$  はその位置での原子数密度  $n_s(r, \theta)$  に比例し, 式 (2.44) と同様に  $n_s = q_s/\bar{v}$  である (ただし, ここでは原子の速さを選択して検出してはいないので, 平均の速さ  $\bar{v}$  を用いる). したがって, ある位置  $(r, \theta)$  での自然放出光強度  $I_f(r, \theta)$  は

$$I_f(r, \theta) \propto \frac{q(r, \theta)}{\bar{v}(\theta)} = \frac{s(\theta)}{\bar{v}(\theta)r}, \quad (2.65)$$

と表せる. 上述の自然放出光強度プロファイルを取った中心線上の位置  $(\Delta x, z)$  の散乱角  $\theta$  は

$$\theta = \tan^{-1} \left( \frac{z}{\Delta x} \right) + \left( \frac{\pi}{2} - \theta_i \right), \quad (2.66)$$

で計算でき, 散乱点からの距離  $r$  は

$$r = \sqrt{\Delta x^2 + z^2}, \quad (2.67)$$

である. 式 (2.65-2.67) を用いると, 自然放出光プロファイル  $I_f(z)$  から  $s(\theta)$  の情報が得られる.

図 2.25 に示されている自然放出光プロファイルを一見すると, 散乱原子の角度分布は幅広く, 表面垂直に近い方向によく散乱されることが推測できる. これらの特徴は Knudsen の余弦則 (cos 則) と呼ばれる散乱角度分布の特徴と一致する. 余弦則とはその名の通り, 散乱強度が散乱角度  $\theta$  の余弦 ( $\cos \theta$ ) で表される分布のことである. 余弦則は Maxwell-Boltzmann 統計における速度分布から自然に導かれ, 散乱の際に表面で運動方向がランダムになったことを示す. 運動方向の揃った原子ビームが散乱によってランダムな方向に運動するようになる原因としては 2 つの可能性が考えられる. 1 つは, パラフィン膜との散

乱の過程で原子の並進運動が熱平衡に達した可能性。もう1つは、パラフィン膜の表面が粗く乱反射した可能性である。今は漏れ出し原子ビームを入射していて入射原子の速度分布は熱平衡時と等しいから、どちらの場合でも散乱原子の速度分布はマクスウェル分布で表せるはずである。しかし、それぞれの場合でマクスウェル分布を特徴付ける温度は異なるはずで、パラフィン膜との熱平衡に至った場合には散乱原子の温度は膜の温度に一致し、乱反射の場合には原子ビームの温度、すなわちオーブンの温度に一致するはずである。

表面から原子が脱離する際の速度分布を考えると、その速度分布は原子オーブンにあいた小さな孔から原子が飛び出してくる際の速度分布と等価であり、マクスウェル分布では式(2.1-2.3)で表される。したがって、散乱原子の角度分布は式(2.6)と等価であり、

$$s(\theta) = C_\theta \cos \theta, \quad (2.68)$$

と表せる。 $C_\theta$ は定数である。また、余弦則に従う場合には散乱原子の速さの分布は式(2.5)で表されるから、原子の平均速さ $\bar{v}$ は散乱角 $\theta$ に依らない。

散乱角度分布が余弦則に従う場合に得られる自然放出光プロファイル $I_f(z)$ を考える。平均速さ $\bar{v}$ が散乱角 $\theta$ に依らず、また $s(\theta)$ が式(2.68)で表せるから、 $I_f(z)$ は

$$I_f(z) = \frac{1}{C_\theta} \frac{\cos \theta}{\bar{v} r} \quad (2.69)$$

$$= \frac{1}{C_\theta \bar{v}} \frac{1}{\sqrt{\Delta x^2 + z^2}} \cos \left\{ \tan^{-1} \left( \frac{z}{\Delta x} \right) + \left( \frac{\pi}{2} - \theta_i \right) \right\} \quad (2.70)$$

$$= C_f \frac{\Delta x \sin \theta_i - z \cos \theta_i}{\Delta x^2 + z^2}, \quad (2.71)$$

と計算できる。 $\Delta x = 3.9 \text{ mm}$ ,  $\theta_i = 70^\circ$ で式(2.71)を計算すると、図2.26になる。

実際の実験では、原子ビームが幅を持つことによる散乱点の広がりや、カメラがレーザー光に対して斜めに自然放出光を撮影していることによる影響が自然放出光プロファイルに現れる。

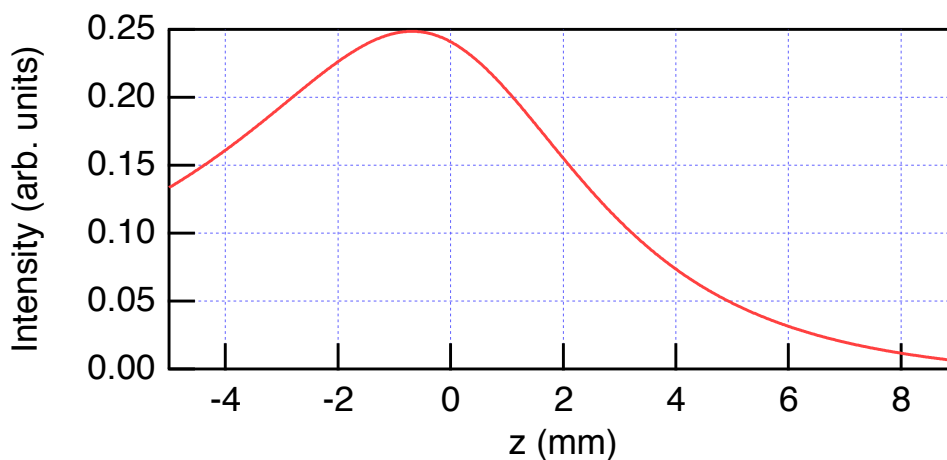


図 2.26 式(2.71)で計算した自然放出光プロファイル。 $\Delta x = 3.9 \text{ mm}$ ,  $\theta_i = 70^\circ$ .

まずは原子ビームの  $x$  方向の幅  $w_x$  による影響を考える。原子ビームの入射位置を  $-w_x/2$  から  $w_x/2$  の範囲ですらして積分すれば良いから、原子ビームの中心からのズレを表すパラメータ  $\delta_x$  を導入して、

$$I_f(z) = \int_{-w_x/2}^{w_x/2} C_f \frac{(\Delta x - \delta_x) \sin \theta_i - (z - \delta_x \tan \theta_i) \cos \theta_i}{(\Delta x - \delta_x)^2 + (z - \delta_x \tan \theta_i)^2} d\delta_x. \quad (2.72)$$

とすれば  $w_x$  の影響を繰り込める。

次に、原子ビームの  $y$  方向の幅  $w_y$  とカメラの角度による影響を考える。図 2.24 に示されているように、本実験では CCD カメラの向きは  $y$ - $z$  平面にあつて、 $y$  軸に対してはある程度の角度を持っている。その様子を  $x$  軸正の方向から見た模式図を図 2.27 の下段に示した。  $y$  軸に対するカメラ角度を  $\theta_c$  としている。原子ビームは  $y$  方向に幅  $w_y$  を持つて膜に入射し、散乱される。散乱原子からの自然放出光は CCD カメラで検出されるが、カメラのあるピクセルに入ってくる自然放出光はそのピクセルに垂直な一点鎖線上の原子からの自然放出光と考えられる。すると、そのピクセルで検出される自然放出光はある散乱角  $\theta$  の散乱原子からのみの自然放出光ではなく、図 2.27 の上段（側面図）で示されているように、原子ビームの幅  $w_y$  に対応して  $\theta_1$  から  $\theta_2$  の範囲の散乱角の原子からの自然放出光が重なっている。したがって、自然放出光プロファイル  $I_f$  においては異なる  $z$  からの自然放出光の足し合わせだと考えればよい。原子ビーム中心での散乱点からの散乱原子が位置  $z$  で検出されるとすると、

$$z_1 = z - \frac{1}{2} w_y \tan \theta_c, \quad (2.73)$$

$$z_2 = z + \frac{1}{2} w_y \tan \theta_c, \quad (2.74)$$

とできて、式 (2.72) を少し修正して、

$$I_f(z) = \int_{-w_x/2}^{w_x/2} d\delta_x \int_{z - \frac{1}{2} w_y \tan \theta_c}^{z + \frac{1}{2} w_y \tan \theta_c} dz' C_f \frac{(\Delta x - \delta_x) \sin \theta_i - (z' - \delta_x \tan \theta_i) \cos \theta_i}{(\Delta x - \delta_x)^2 + (z' - \delta_x \tan \theta_i)^2}. \quad (2.75)$$

が得られる。

本実験では散乱されるあたりで  $w_y = 5 \text{ mm}$  で、CCD カメラの角度  $\theta_c = 40^\circ$  だった。これらの値を使って式 (2.75) で計算した自然放出光プロファイルを赤線で図 2.28 に示す。破線は式 (2.71) を示している。

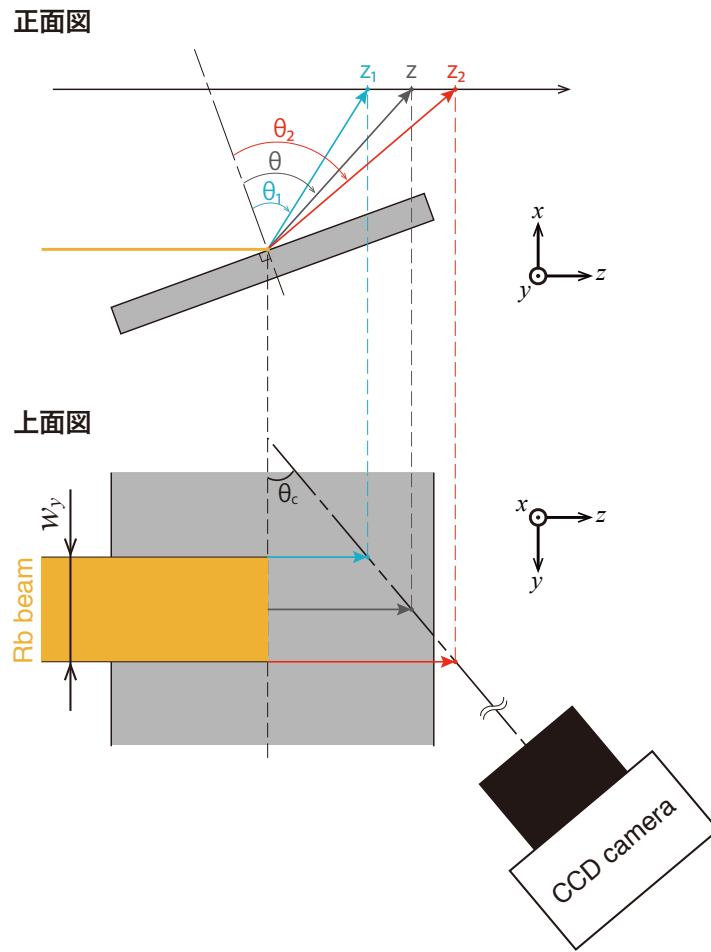


図 2.27 原子ビームの  $y$  方向の幅  $w_y$  とカメラ角度による影響の模式図.

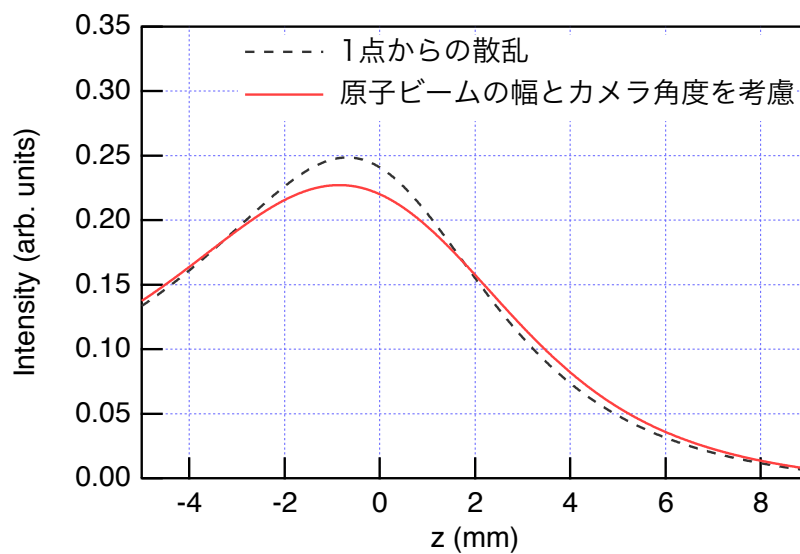


図 2.28 原子ビームの幅  $w_x, w_y$  およびカメラ角度を考慮した自然放出光プロフィール.  $\Delta x = 3.9 \text{ mm}, \theta_i = 70^\circ, w_x = 0.5 \text{ mm}, w_y = 5 \text{ mm}, \theta_c = 40^\circ$ .

## 2.4.3 速度分布測定

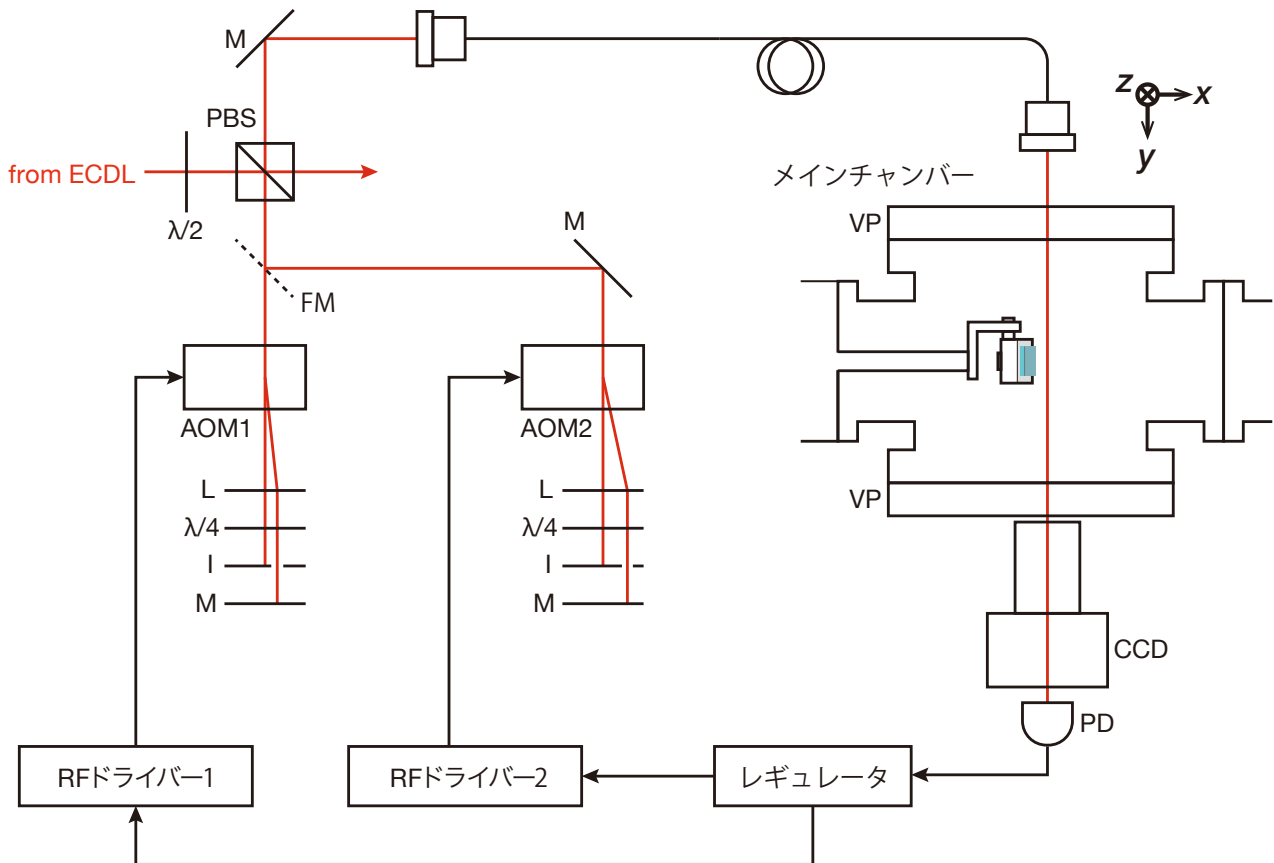


図 2.29 速度分布測定の光学系. PBS: 偏光ビームスプリッター, M: ミラー, FM, フリップミラー,  $\lambda/2$ :  $1/2$  波長板,  $\lambda/4$ :  $1/4$  波長板, L: レンズ, I: アイリス, AOM, 音響光学変調器 (acousto-optic modulator), PD: フォトダイオード.

速度分布測定では、原子ビームの速度分布測定の時と同様に、レーザー光の周波数を共鳴周波数から離調し、ドップラー効果を利用して散乱原子のレーザー方向の速度成分を選んで検出する。

ECDL からの光は音響光学変調器 (AOM: acousto-optic modulator) で回折され、周波数が離調される。AOM による回折光はレンズ、 $1/4$  波長板、アイリスを通過してミラーで反射され、来たパスを戻す。戻ったレーザーは再びアイリス、 $1/4$  波長板を通り、来たときとは直交する直線偏光で AOM に再び入射する。AOM で再び回折された光は PBS を透過し、偏光保持ファイバーに入射する。望ましい離調の大きさを実現するために、本測定では離調の大きさに応じて AOM1 と AOM2 を使い分けた。それぞれの AOM は周波数を離調できる大きさが異なっている。AOM1 と AOM2 はフリップミラーで切り替えた。偏光保持ファイバーを通った光は散乱角  $\theta \sim 0^\circ$  の位置に入射し、その後フォトダイオードでパワーをモニターしている。フォトダイオードで検出したパワーを安定化するように、AOM を駆動している RF ドライバーに信号をフィードバックしている。パワーは  $100 \mu\text{W}$  に安定化した。ECDL の周波数は  $F = 3$  からの偏光分光スペクトルで、測定条件に応じて最適なピークに安定化した。



## 2.5 結果と議論

角度分布や速度分布、ハイパーファイン偏極度を測定する前に、散乱原子からの自然放出光が安定するまで試料を原子ビームに曝した。試料#1（シリコンウェハー）では安定するまでに数時間を要したが、一方で試料#2-4（パラフィン膜）では原子ビームに曝してから短い間で自然放出光が安定した。

### 2.5.1 ハイパーファイン偏極度測定の結果

用意したそれぞれの試料で散乱された原子について式 (2.53) で定義した  $\Delta_s$  を測定した。また各々の測定の際に原子ビームについても同様の測定を行って  $\Delta_b$  を求めた。 $\Delta_s$  と  $\Delta_b$  より、原子ビームの偏極度を基準とした散乱原子のハイパーファイン偏極度  $P_{hf}$  を計算した (式 (2.54))。試料ごとの  $P_{hf}$  を図 2.30 に示す。測定を複数回行って求めた標準誤差をエラーバーで示している。破線は  $P_{hf} = 1$  を示し、すなわち、散乱でハイパーファイン偏極が緩和しなかった場合の値を表している。

パラフィン膜 (#2-4) で散乱された原子の  $P_{hf}$  は 1 に近く、測定の不確かさの範囲ではハイパーファイン偏極の緩和は見られなかったと言える。この結果から、本実験で用意したパラフィン膜がスピン緩和防止性能を有していることを確かめられた。#1（シリコンウェハー）表面での散乱ではハイパーファイン偏極が緩和していることがわかる。ただ、 $P_{hf} = 0.57 \pm 0.8$  で完全には緩和していない。これまでの研究では、スピン緩和防止コーティングされていない固体表面ではアルカリ原子のスピン偏極状態は一回の衝突で完全に緩和されると考えられてきた [2] ので、この結果は興味深い。

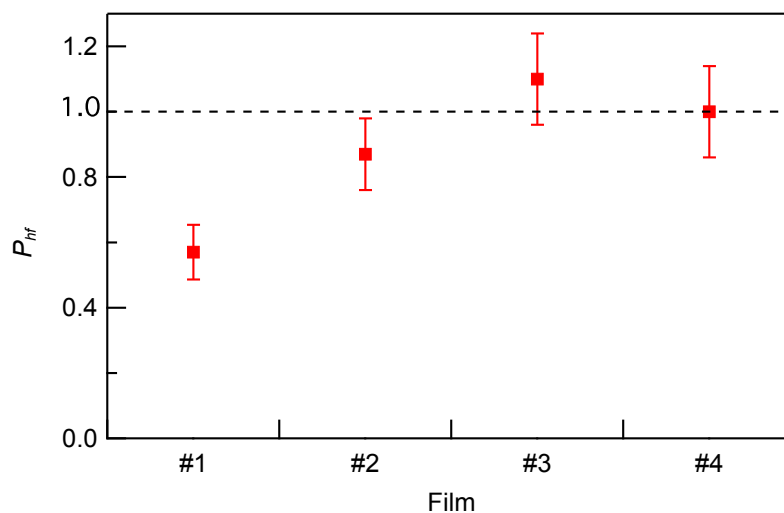


図 2.30 散乱原子のハイパーファイン偏極度。

## 2.5.2 角度分布測定の結果

シリコンウェハー#1 とパラフィン膜#2-4 で測定された自然放出光プロファイル  $I_f(z)$  を図 2.31 から図 2.34 までに順番に示す。それぞれのグラフで赤点は実験データを、赤線は余弦則から導いた式 (2.75) によるカーブフィッティングを表している。フィッティングにおいてはそれぞれの測定での測定条件を  $\Delta x, \theta_i, \theta_c, w_x, w_y$  に代入し、定数係数  $C_f$  のみをフィッティングパラメータとした。本実験では、どの試料での測定でも  $\theta_c = 40^\circ, w_x = 0.5 \text{ mm}, w_y = 5 \text{ mm}$  であったが、 $\Delta x$  と  $\theta_i$  は測定によって条件が若干異なる。そのため  $\Delta x$  と  $\theta_i$  についてはグラフ中に測定時の値を記載した。

これらの図 2.31-2.34 を見ると、余弦則から導いた式 (2.75) で実験データをよく説明できることがわかる。したがって、全ての試料#1-4 において、Rb 原子は入射前の運動方向とは関係なく余弦則に従った角度分布で散乱されるといえる。

試料#3 と#4 のグラフ（図 2.33 と図 2.34）では試料#1,2 の測定に比べてデータのばらつきが大きい。これは入射原子ビームの流量が試料#1,2 のときと比べて少なかったためと考えられる。実際、プローブ光の入射位置を原子ビームに合わせたときの自然放出光の強さが試料#3 と#4 の測定のときは弱くなっていた。また、試料#4 の測定後に原子ビームを使用したところ原子ビームからの自然放出光は更に減少した。流量が少なくなった原因ははっきりと断定はできないが、漏れ出し原子ビームの使用によって原子オーブン内の Rb アンブルが消費されて試料#3,4 での測定の際には流量が少なくなってしまったと考えられる。

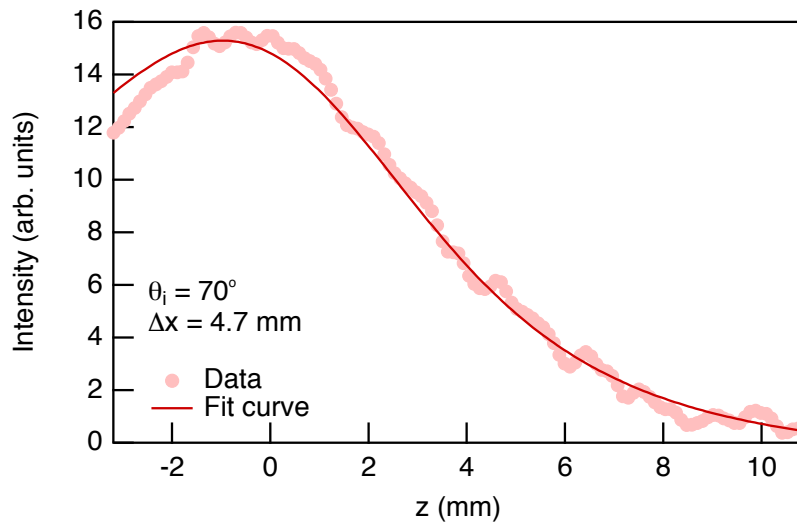


図 2.31 #1 の自然放出光プロファイル

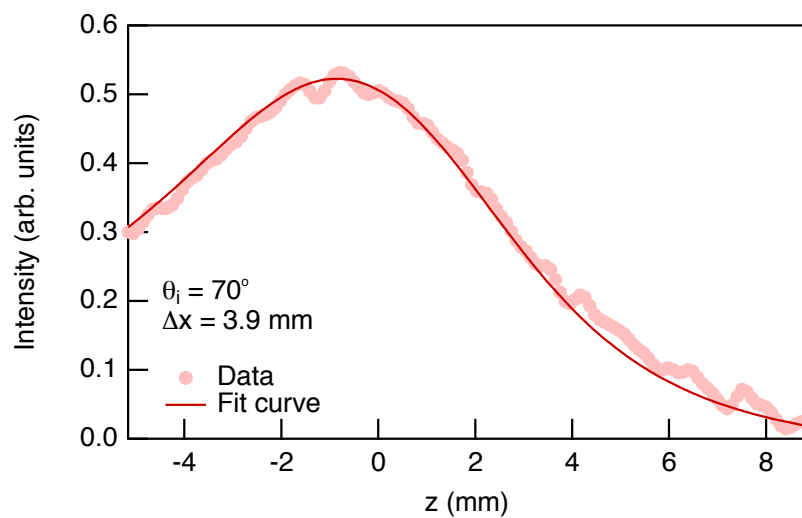


図 2.32 #2 の自然放出光プロファイル

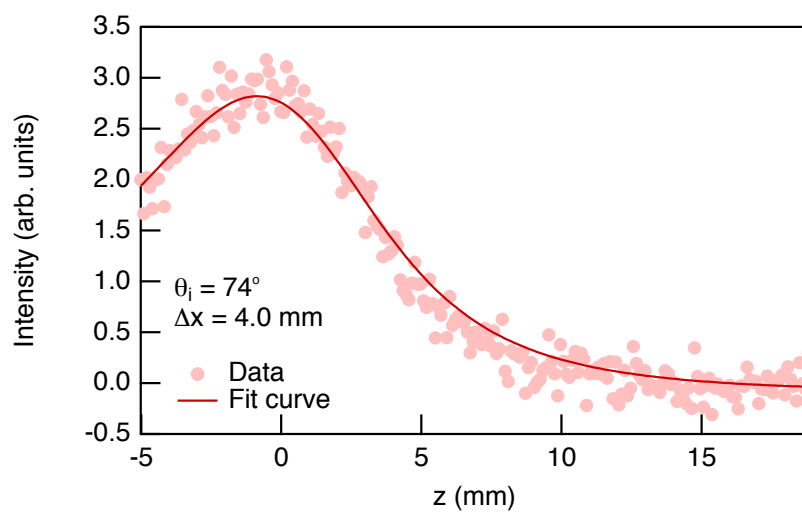


図 2.33 #3 の自然放出光プロファイル

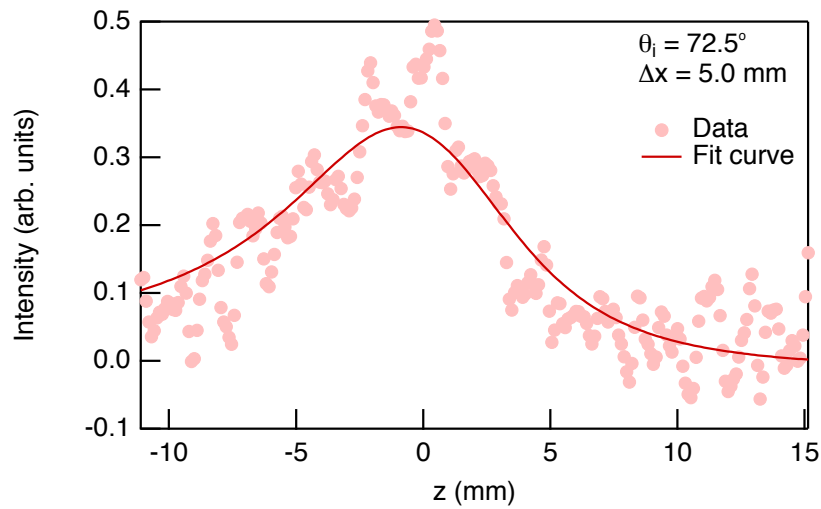
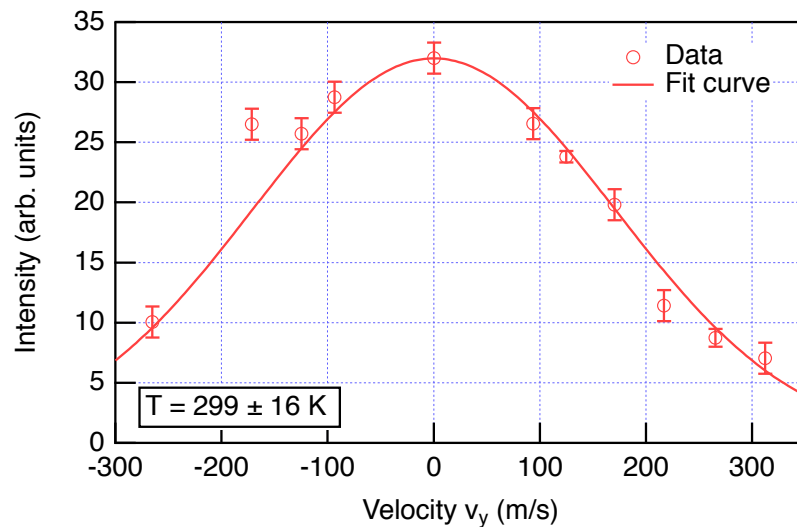
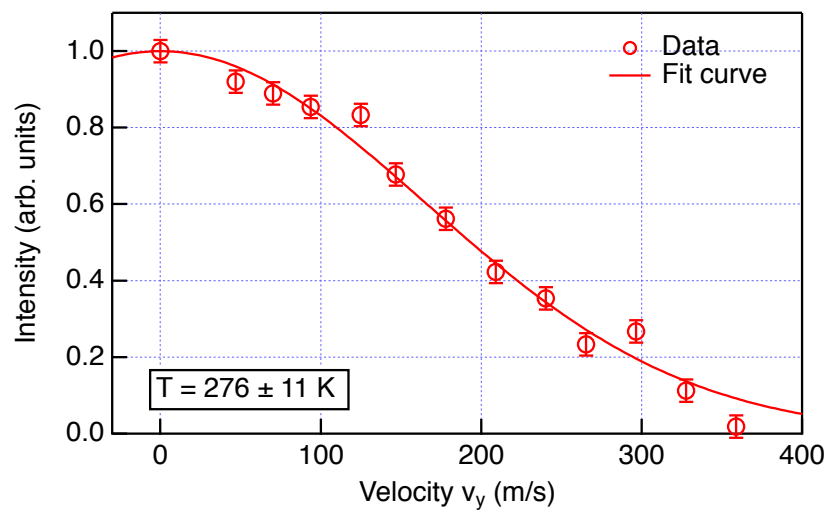
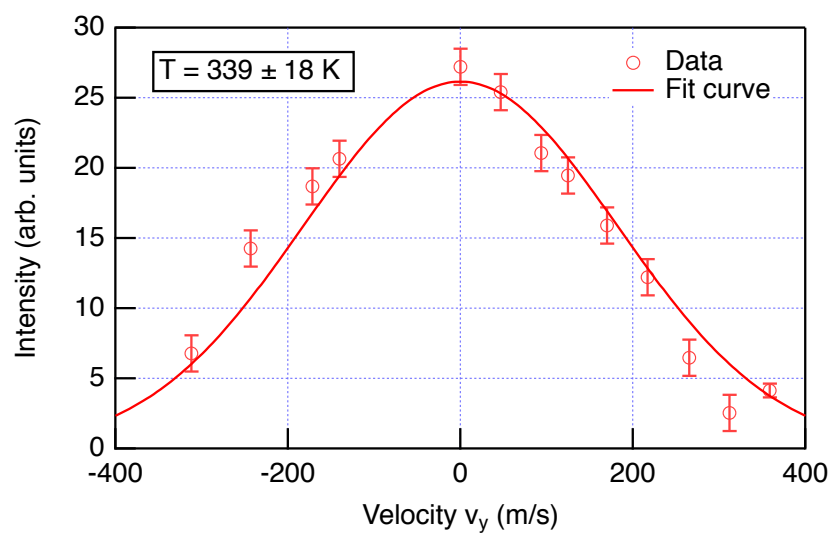


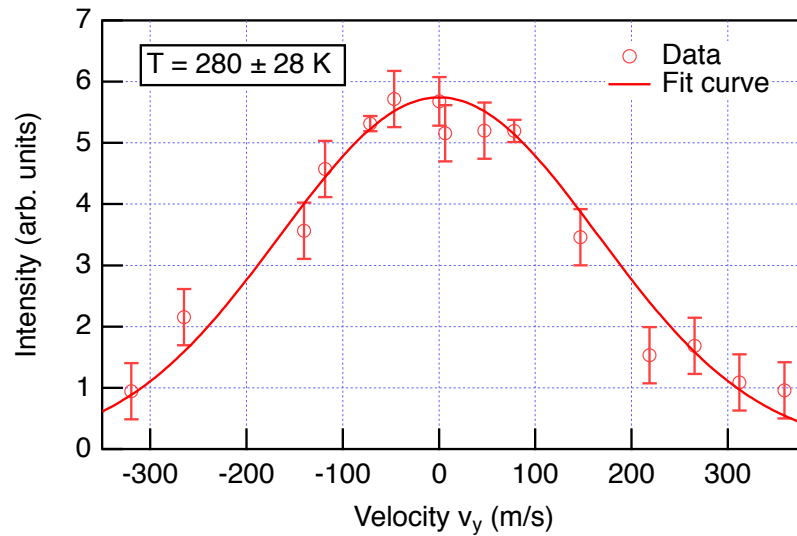
図 2.34 #4 の自然放出光プロファイル

### 2.5.3 速度分布測定の結果

図 2.35 から図 2.38 に試料#1 から#4 での速度分布測定の結果を赤点で示す。横軸は検出している散乱原子の  $y$  方向（プローブ光方向）の速度成分  $v_y$  を、縦軸は自然放出光の強さを表している。速度分布測定の際の自然放出光信号の揺らぎは主に散乱光に由来していた。そのため、散乱原子の速度  $v_y$  を変えても測定の不確かさは変わらないと考えて、ある速度  $v_y$  で複数回行ったときの標準偏差を計算して各速度での信号の不確かさとした。

図 2.35 #1 で散乱された原子の  $y$  方向の速度分布

図 2.36 #2 で散乱された原子の  $y$  方向の速度分布図 2.37 #3 で散乱された原子の  $y$  方向の速度分布

図 2.38 #4 で散乱された原子の  $y$  方向の速度分布

原子ビームの速度分布測定と同様に、本測定でも  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  の遷移のみ考える。前述の角度分布測定の結果から、ルビジウム原子の運動方向は散乱によってランダムになると考える。よって、散乱原子の速さの分布が Maxwell 分布であれば、レーザー方向の速度成分  $v_y$  の速度分布も Maxwell 分布（式 (2.2)）に従うと考える。式 (2.2) を使って、温度  $T$  とスケーリングのための定数係数のみをフィッティングパラメータとしてそれぞれの測定データにカーブフィットした。フィットした曲線はそれぞれのグラフで実戦で示されており、フィッティング結果の温度  $T$  もグラフ中に記してある。

原子ビームの  $v_y$  の分布は、 $y$  方向のビーム広がり  $\theta_y$  が  $12 \text{ mrad}$  であることから、せいぜい  $-5 \text{ m/s} \leq v_y \leq 5 \text{ m/s}$  である。どの試料においても、原子ビームの  $y$  方向の速度分布に比べて極めて大きな速度広がりを持っていることがわかる。

カーブフィッティングで求めた散乱原子の温度を図 2.39 にまとめて示す。エラーバーは測定の不確かさを考慮したカーブフィッティングから求めた。300 K 付近の破線は試料温度（室温）を表している。高温部の斜線領域は原子ビームの温度を表している。散乱原子の温度はどの試料においても、原子ビームの温度よりも 200 K 近く低く、一方で試料温度に近い。

角度分布が余弦則に従うとき、その物理的な理由としては 2 つが考えられる。1 つは原子の膜表面での乱反射である。これは光の乱反射の場合と同様に考えれば良い。個別の散乱において例えば鏡面反射のように原子が散乱されたとしても、表面の凹凸が大きいと局所的な入射角が広い範囲でランダムに分布していることになり、散乱の角度分布は余弦則に従う。また散乱原子の速度分布は Maxwell 分布に従う。もう 1 つは、散乱の過程で原子の運動エネルギーおよび運動量が表面との間でやり取りされ、運動状態が表面との熱平衡状態に至る場合である。このような場合、原子は表面に適応 (accommodation) されたと言われる。原子が適応されると散乱原子の速度分布はやはり Maxwell 分布に従う。

乱反射された場合と表面に適応された場合とでは、散乱原子の速度分布は両者とも Maxwell 分布に従うが、Maxwell 分布を特徴付ける温度が異なる。まずは乱反射された場合の速度分布  $f_R(v)dv$  について考える。温度が  $T_0$  の原子オーブンから漏れ出た原子ビームの速さ分布を  $f_v(v; T_0)$  とする。乱反射され

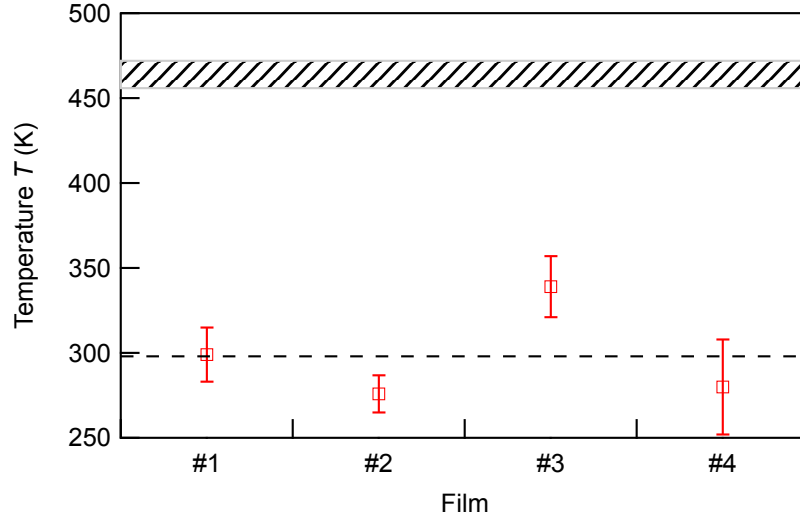


図 2.39 散乱原子の温度.

た場合には散乱方向は余弦則に従い，速さ分布は散乱前と変わらないはずだから，散乱原子の速度分布  $f_R(\mathbf{v})d\mathbf{v}$  は

$$f_R(\mathbf{v})d\mathbf{v} = \frac{1}{\pi} \cos \theta f_v(v; T_o) dv d\omega, \quad (2.76)$$

で表せる．この速度分布を速度空間で直交座標系に変換すると，形式的には式 (2.1-2.3) と等価な式が導ける．したがって，乱反射の場合の  $y$  方向の速度分布は温度が  $T_o$  の式 (2.2) に等しい:

$$f_y(v_y; T_o) dv_y = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_o}} \exp\left(-\frac{mv_y^2}{2k_B T_o}\right) dv_y. \quad (2.77)$$

他方で例えば原子が表面に完全に適応された場合，すなわち表面との熱平衡状態に至った場合を考えると，その速度分布は温度が試料温度  $T_s$  の式 (2.2) で表せる:

$$f_y(v_y; T_s) dv_y = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_s}} \exp\left(-\frac{mv_y^2}{2k_B T_s}\right) dv_y. \quad (2.78)$$

上述の通り，測定した散乱原子の温度は原子オーブン温度  $T_o$  ( $\sim T_b$ ) よりも 100 K 以上低い．そのため，散乱原子は膜表面で乱反射しているから余弦則の角度分布を示しているわけではなく，散乱過程で表面に適応していると考えられる．更に散乱原子の温度が試料温度  $T_s$  に近いことから適応の程度は大きく，Rb 原子の運動状態は表面と熱平衡状態に至ったと考えられる．

## 2.6 まとめ: パラフィンコーティング表面でのアルカリ金属原子の散乱

本実験では，Rb 原子の漏れ出しビームをパラフィン膜に入射し，散乱した原子の角度分布と速度分布を測定した．実験には異なる方法で成膜したパラフィン膜を使用し，膜の表面形状と結晶性をそれぞれ原子間力顕微鏡と X 線回折で分析した．各々のパラフィン膜は成膜法の違いによって表面形状と結晶性に

それぞれ異なる特徴を有していた。また、散乱原子のハイパーファイン偏極度を測定して、成膜したパラフィン膜が Rb 原子のスピンの緩和を防止することを確かめた。表面の状態は膜によってばらつきがあったものの、どのパラフィン膜においても散乱原子の角度分布は余弦則に従った。速度分布も、どのパラフィン膜で散乱された Rb 原子も Maxwell 分布に従う速度分布であった。速度分布から散乱原子の温度を求めると、原子ビームの温度よりも 200 K 近く低く、一方でパラフィン膜の温度に近かった。これらの結果から、パラフィン膜による散乱で、Rb 原子の内部状態は偏極を保つものの、並進運動状態は膜との熱平衡に至ると結論づけた。



## 第 3 章

# 背景ガスによる散乱：パラフィンコーティングセル内の速度変化衝突レートの測定

本章では、スピン緩和防止コーティングセル内の背景ガスによるアルカリ金属原子の散乱について述べる。

コーティングセルを用いたこれまでの実験では、背景ガスとの衝突は無視できるほど稀で、アルカリ金属原子は壁から壁へ自由に運動すると考えられてきた。しかし、コーティングとアルカリ金属原子との反応によってガスが生じることを示唆する実験が報告されている [25, 38, 39]。これらの実験ではコーティングセルを破壊して中に入っていたガスを質量分析している。質量分析の結果、水素や炭化水素化合物が検出されている。ただ、ガスの圧力や数密度は評価しておらず、衝突が無視できないほどの量がセル内に存在するかは明らかではない。

本実験では、コーティングセル内の速度変化衝突レートを測定する手法を開発し、実際に複数個のパラフィンコーティングセルで測定を行った。コーティングセルの緩和時間も同時に測定した。

速度変化衝突 (velocity-changing collision: VCC) とは原子の内部状態は変えないが、速度を変化させるような衝突を意味している。上述のガスの質量分析で検出されたガスは、アルカリ金属原子のスピン緩和を引き起こすような衝突の確率は、速度だけが変化するような衝突 (速度変化衝突) に比べると無視できるくらい低い。例えば水素とメタン ( $\text{CH}_4$ ) の場合で見積もってみる。水素ガスとメタンの分子直径はそれぞれ  $2.74 \times 10^{-8} \text{ cm}$  と  $4.14 \times 10^{-8} \text{ cm}$  で [48]、分子直径から単純に断面積を計算するとどちらも  $1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$  のオーダーである。一方でスピン緩和を引き起こす衝突の断面積は、水素で  $3 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ 、メタンで  $8 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$  であり [49]、無視できるほど小さいことがわかる。

また、本実験ではコーティングセルを  $80^\circ\text{C}$  程度で長時間温めるライブニングと呼ばれる工程の前後で VCC レートおよび緩和時間を測定し、ライブニングがセルに与える影響を評価した。

### 3.1 従来の分光的手法による背景ガス測定

アルカリ蒸気セル内のガス圧力を測定する方法としては、アルカリ原子共鳴線の圧力広がり測定する方法がある。 $^{85}\text{Rb}$  D2 線の自然幅 (FWHM) は  $6 \text{ MHz}$  程度だから、この方法で測定できるのは、少なくとも圧力広がりも  $6 \text{ MHz}$  程度の幅を持つ場合である。例えば、 $^{85}\text{Rb}$  とメタン ( $\text{CH}_4$ ) との衝突による

$^{85}\text{Rb}$  D2 線の圧力広がりを考える。文献 [50] より単位圧力あたりの圧力広がりには  $\sim 3 \times 10 \text{ MHz/Torr}$  なので、測定できる圧力の下限は  $\frac{6 \text{ MHz}}{3 \times 10 \text{ MHz/Torr}} = 0.2 \text{ Torr} \approx 27 \text{ Pa}$  となる。これよりも低い圧力の残留ガスを測定するためには別の方法が必要である。

数 Pa 程度の圧力の残留ガスを測定するひとつの方法は、残留ガスとの衝突によるアルカリ原子の速度変化を観測することである [51–54]。線幅の狭いレーザー光を用いて特定の速度の原子を選択的に観測すると、原子の速度が変化して共鳴条件から外れたことによる吸収スペクトルの変化が得られる。このとき、衝突で起こる緩和によってもスペクトルは変化するものの、緩和が起きる衝突のレートは緩和せずに速度だけ変化する衝突（速度変化衝突, velocity-changing collision: VCC）のレートよりも十分小さいから、緩和によるスペクトルの変化は無視することができる。

VCC によるスペクトルの変化から残留ガスを測定する方法の場合には、測定できる圧力の下限はアルカリ原子の緩和時間で決まる。先程と同様に  $^{85}\text{Rb}$  D2 線を例にして、まずは原子が励起状態にいる間に起こる VCC を利用した測定を見積もってみる。D2 線の励起状態の寿命はおおよそ 30 ns であるから、残留ガスと衝突するまでの平均時間が 30 ns よりも短くなければ、速度変化を観測することはできない。すなわち、衝突レート  $\gamma$  が  $\gamma = \frac{1}{30 \text{ ns}} \sim 3 \times 10^7 / \text{s}$  以上であるとき速度変化を観測できる。残留ガスと Rb との平均相対速度  $\bar{v}$  を  $1 \times 10^5 \text{ cm/s}$ 、衝突断面積  $\sigma$  を  $1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$  と仮定すると [54]、残留ガスの数密度は  $n = \frac{\gamma}{\sigma \bar{v}} \sim 3 \times 10^{16} / \text{cm}^3$  と見積もれる。よって測定下限の圧力は、理想気体の状態方程式より、 $3 \times 10^{16} \cdot 6 \cdot 1 \times 10^{-23} \text{ J/K} \cdot 300 \text{ K} \approx 9 \times 10 \text{ Pa}$  程度である。

ドップラー効果を利用して速度選択的にスピン偏極すれば、より低いレートでも VCC によってスペクトルが変化する [55]。しかしここで問題となるのが、ガラス内壁との VCC である。内壁にスピン緩和防止コーティングが施されていない場合には、ガラス内壁との衝突はスピン緩和を引き起こす。一方でコーティングが施されている場合には、背景ガスとだけでなく、内壁とも VCC を起こす。そのため、コーティングセルでは、スペクトルの変化が背景ガスとの VCC に起因するのか、コーティングとの VCC に起因するのかを区別することができなくなってしまう。

そこで本研究で考案した方法では、VCC がスピン偏極原子に与える影響を時間分解測定し、コーティングとの VCC が起こる前に測定を終える方式を取った。次節から詳しく説明する。

## 3.2 速度変化衝突レート測定

測定の模式図を図 3.1 に示す。アルカリ蒸気セルの中心を通るように円偏光のポンプ光を入射する。ポンプ光はある時間間隔  $\tau_p$  だけパルス状に入射し、ポンプ光パルスの終わりを  $t = 0$  とする。ポンプ光の周波数を原子の共鳴周波数に合わせると、ドップラー効果によって、セルの中央を通りレーザー方向 ( $z$  方向とする) の速度成分  $v_z$  がゼロの原子のみが選択的にポンプ光を吸収してスピン偏極される。このような速度を選択した光ポンピングは速度選択光ポンピング (velocity-selective optical pumping: VSOP) と呼ばれる。 $v_z = 0$  の原子の速度選択光ポンピングすると、 $t = 0$  ではスピン偏極度の  $z$  方向の速度分布は図 3.1 左下のよう  $v_z = 0$  に鋭いピークを持つ。ポンプ光で  $z$  方向の速度成分は選択していたが、レーザーに垂直な方向の速度は選んでおらず、 $t = 0$  においてセル中央でスピン偏極された原子はレーザーに垂直な方向 ( $x$ - $y$  平面内) に運動する。背景ガスとの衝突が無視できない場合には、原子の速度は衝突によって変化するはずである。背景ガスとの衝突で速度変化衝突のみを考えれば、速度変化衝突によってス

ピン偏極度の速度分布の再分配が起こり、定常状態ではマクスウェル分布になる（図 3.1 右下のグラフ）。初期速度分布から定常状態へ至る速度分布の時間発展を観測できれば、背景ガスとの衝突の詳細を調べることができる。

そこで本測定では、ポンプ光と同軸上を対向する向きに進むプローブ光を使って速度分布の時間発展を調べる。より精確には、速度分布の速度  $v_z = 0$  成分の時間発展をプローブ光で観測する。そのため、プローブ光の周波数はポンプ光と同じく原子の共鳴周波数に合わせる。また、プローブ光のビーム径はポンプ光のビーム径よりも十分太く、なおかつセルの大きさよりは小さくしておく。プローブ光の周波数が共鳴周波数と一致しビーム径がポンプ光の径よりも十分太いことで、ポンプ光でスピン偏極されて  $x$ - $y$  平面内を運動する原子のスピン偏極度をプローブすることができる。本測定では、第 3.2.1 節で説明するように、プローブ光の円偏光の向きが  $\sigma^+$  のときと  $\sigma^-$  のときのプローブ吸収量の差からスピン偏極度を観測した。このようにして、スピン偏極度の  $v_z = 0$  の成分の時間発展をプローブ光で観測でき、定常状態に至るまでの時間発展の様子から速度変化衝突レートを測定できる。また、プローブ光の径がセルの大きさよりも小さいことで原子がセル内壁に到達する前に測定を終わらせることが可能であり、コーティング表面との速度変化衝突によって速度が再分配された成分を除くことができる。

本測定で速度変化衝突レートを測定する原理は上述のように模式的に説明できる。速度変化衝突による速度分布の時間発展やプローブ光で観測できるスピン偏極度への寄与などを以下で詳しく説明する。

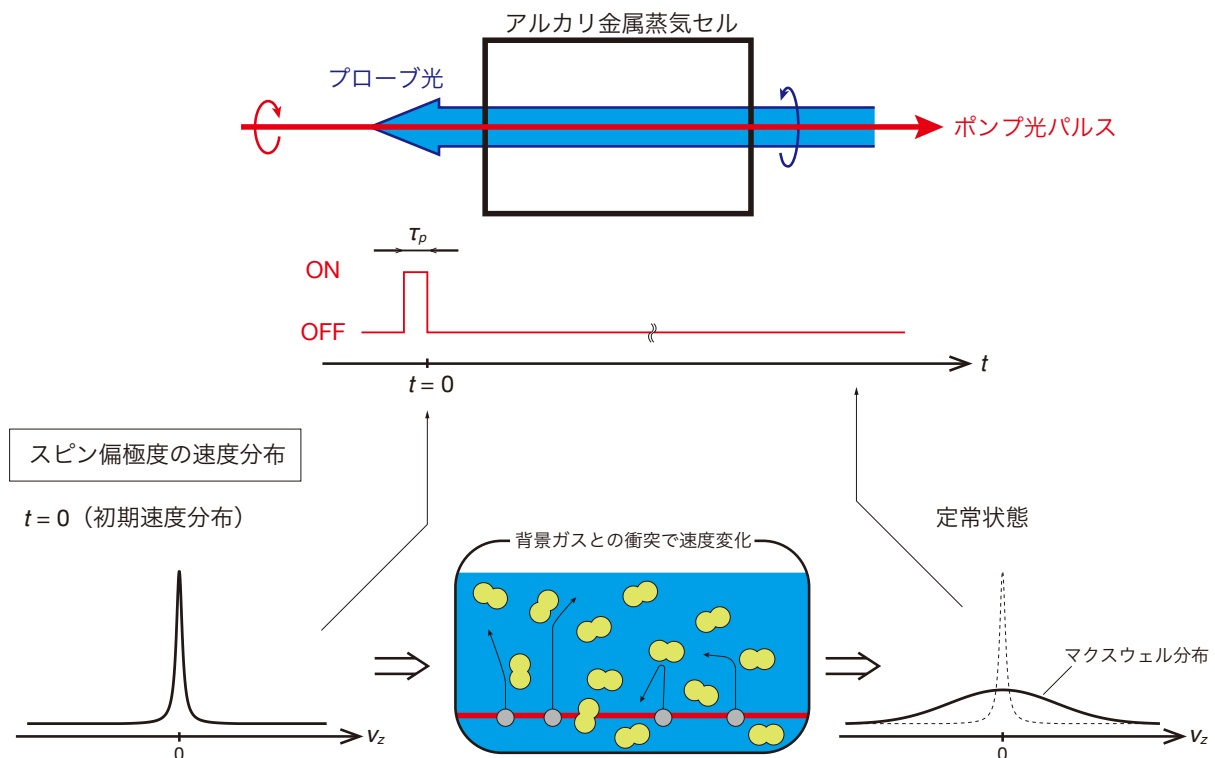


図 3.1 速度変化衝突レート測定の模式図.

### 3.2.1 プローブ光吸収量のスピン偏極依存性

本実験では、円偏光の光を吸収する確率がスピン偏極度に依存する性質を利用し、互いに逆向きの円偏光のプローブ光を入射した時の吸収量の差を通してスピン偏極を観測した。まずは本項で、プローブ光で原子アンサンブルのどのような物理量をどのようにして観測しているかを説明する。

プローブ光の吸収量を議論したいので、光と原子との相互作用による電気双極子遷移を考える。この時の相互作用ハミルトニアン  $H_{ed}$  は、電気双極子演算子を  $-er_e$  とすると、

$$H_{ed} = er_e \cdot E_{op}, \quad (3.1)$$

と表せる。ここで  $E_{op}$  は光の電場を表し、振幅  $E_0$  と角周波数  $\omega_{op}$ 、偏光を表す単位ベクトル  $\hat{e}_p$  を使って、

$$E_{op}(t) = E_0 \operatorname{Re} \left( e^{-i\omega_{op}t} \hat{e}_p \right), \quad (3.2)$$

と書く。簡単のため、光の周波数は原子の共鳴周波数に一致しているとする。式 (3.1) の相互作用によって始状態  $|i\rangle$  から終状態  $|f\rangle$  へ状態が遷移するレート  $W_{if}$  は  $\langle f|H_{ed}|i\rangle$  の絶対値の二乗に比例し、

$$\begin{aligned} W_{if} &\propto |\langle f|H_{ed}|i\rangle|^2 \\ &= (eE_0)^2 |\langle f|r_e \cdot \hat{e}_p|i\rangle|^2, \end{aligned}$$

となる。したがって、遷移レート  $W_{if}$  のスピン偏極依存性を知るためには  $\langle f|r_e \cdot \hat{e}_p|i\rangle$  が計算できれば良い。

本実験で行なった測定に則して、光の偏光を円偏光 ( $\sigma^+$ ) とする。すなわち、球面基底で偏光ベクトルを表すと、

$$\hat{e}_p = \sum_{q=1}^{-1} A_q \hat{e}_q = \hat{e}_1, \quad (3.3)$$

であり、

$$\langle f|r_e \cdot \hat{e}_p|i\rangle = \sum_{q=1}^{-1} \langle f|r_{e,q} A_q|i\rangle \hat{e}_q = \langle f|r_{e,1}|i\rangle, \quad (3.4)$$

となる。

本実験においては原子は基底状態  $|F, m_F\rangle$  から励起状態  $|F', m'_F\rangle$  に遷移するから、遷移レートは  $W_{if} \propto |\langle F', m'_F|r_{e,1}|F, m_F\rangle|^2$  である。 $\langle F', m'_F|r_{e,1}|F, m_F\rangle$  にウィグナー・エッカルトの定理 (Wigner-Eckart theorem) を適用すると、

$$\langle F', m'_F|r_{e,1}|F, m_F\rangle = \frac{\langle F' || r_e || F \rangle}{\sqrt{2F'+1}} \langle F, m_F, 1, q=1 | F', m'_F \rangle, \quad (3.5)$$

と変形できる。右辺の分数の分子に現れる  $\langle F' || r_e || F \rangle$  は換算行列要素と呼ばれ、 $m_F$  および  $m'_F$  に依らない。よって、スピン偏極として磁気副準位間の占有数の偏りのみに着目すると、 $\langle F, m_F, 1, 1 | F', m'_F \rangle$  を計算すれば良いことになる。 $\langle F, m_F, 1, q | F', m'_F \rangle$  はクレプシュ・ゴルダン係数と呼ばれる量で、次の漸化式

が成り立つ：

$$\begin{aligned} & \sqrt{(F' - m'_F)(F' + m'_F + 1)} \langle F, m_F, 1, q | F', m'_F + 1 \rangle \\ &= \sqrt{(F - m_F + 1)(F + m_F)} \langle F, m_F - 1, 1, q | F', m'_F \rangle + \sqrt{(2 - q)(1 + q)} \langle F, m_F, 1, q - 1 | F', m_F \rangle, \end{aligned} \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} & \sqrt{(F' + m'_F)(F' - m'_F + 1)} \langle F, m_F, 1, q | F', m'_F - 1 \rangle \\ &= \sqrt{(F + m_F + 1)(F - m_F)} \langle F, m_F + 1, 1, q | F', m'_F \rangle + \sqrt{(2 + q)(1 - q)} \langle F, m_F, 1, q + 1 | F', m_F \rangle. \end{aligned} \quad (3.7)$$

また、 $\langle F, m_F, 1, q | F', m'_F \rangle$  は  $m'_F = m_F + q$  でない場合はゼロになる。今は  $q = 1$  のクレプシュ・ゴールドン係数の比が計算できれば良いから、 $m_F = 0$  のときのクレプシュ・ゴールドン係数を  $C_0$  と置くと、式(3.7)を用いて、

$$|\langle F, m_F, 1, 1 | F', m'_F \rangle|^2 = \frac{(F - m_F)! (F' + m_F + 1)! (F' - 1)!}{(F + m_F)! (F' - m_F - 1)! (F' + 1)!} C_0^2, \quad (3.8)$$

が導ける。逆向きの円偏光である  $\sigma^-$  偏光の場合には  $q = -1$  で、式(3.6)を用いて計算でき、

$$|\langle F, m_F, 1, -1 | F', m'_F \rangle|^2 = \frac{(F + m_F)! (F' - m_F + 1)! (F' - 1)!}{(F - m_F)! (F' + m_F - 1)! (F' + 1)!} C_0^2, \quad (3.9)$$

と  $m_F$  に対して反対称になっている。

本実験では  $^{85}\text{Rb}$  の  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  の遷移に周波数を合わせたレーザーを用いて測定を行う。式(3.8),(3.9)に  $F = 3, F' = 4$  を代入すると、

$$W_{m_F, 1} \propto |\langle 3, m_F, 1, 1 | 4, m'_F \rangle|^2 = \frac{C_0^2}{20} (5 + m_F)(4 + m_F), \quad (3.10)$$

$$W_{m_F, -1} \propto |\langle 3, m_F, 1, -1 | 4, m'_F \rangle|^2 = \frac{C_0^2}{20} (5 - m_F)(4 - m_F), \quad (3.11)$$

が得られる。基底状態  $|F = 3, m_F\rangle$  にある一個の原子が円偏光を吸収するレートは式(3.10),(3.11)で表せるから、原子アンサンブルが光を吸収するレート  $\langle W_{F=3, q=\pm 1} \rangle$  は、 $|F, m_F\rangle$  の占有数  $n_{F, m_F}$  を用いて、

$$\langle W_{F=3, q=\pm 1} \rangle = \sum_{m_F=-3}^3 W_{m_F, \pm 1} \cdot n_{F=3, m_F} = \frac{C_0^2}{20} \left( \langle m_3^2 \rangle \pm 9 \langle m_3 \rangle + 20 \langle n_3 \rangle \right), \quad (3.12)$$

と計算できる。ここで占有数  $n_{F, m_F}$  は

$$\sum_F \sum_{m_F} n_{F, m_F} = 1, \quad (3.13)$$

と規格化されており、

$$\langle m_3^2 \rangle \equiv \sum_{m_F=-3}^3 m_F^2 \cdot n_{F=3, m_F}, \quad (3.14)$$

$$\langle m_3 \rangle \equiv \sum_{m_F=-3}^3 m_F \cdot n_{F=3, m_F}, \quad (3.15)$$

$$\langle n_3 \rangle \equiv \sum_{m_F=-3}^3 n_{F=3, m_F}, \quad (3.16)$$

とおいた.  $\langle W_{3,+1} \rangle$  と  $\langle W_{3,-1} \rangle$  の差を取ると,

$$\Delta W_{F=3} \equiv \langle W_{3,+1} \rangle - \langle W_{3,-1} \rangle = \frac{9C_0^2}{10} \langle m_3 \rangle, \quad (3.17)$$

が得られる.  $C_0$  は定数だから,  $\Delta W_3 \propto \langle m_3 \rangle$  である.  $\langle m_3 \rangle$  は  $F=3$  における  $m_F$  の期待値だから, 原子アンサンブルがどれだけスピン偏極しているかを表す指標となる. つまり,  $\sigma^+$  および  $\sigma^-$  の円偏光を照射して吸収量の差をとれば, 原子のスピン偏極度  $\langle m_3 \rangle$  をプローブできる.

### 3.2.2 速度変化衝突による速度分布の変化

次に, VCC による原子の速度変化による影響を議論する. 今は背景ガスとの衝突では原子の内部状態は変化せず, 原子の速度のみが変化すると考えている. 衝突によって原子の速度がどのように変化するかを collision kernel と呼ばれるパラメータを利用して表すと便利である [56, 57]. collision kernel  $W(v_z, v'_z)$  は速度  $v'_z$  の原子が VCC を起こしたときに速度  $v_z$  に変化する確率を表している. collision kernel  $W(v_z, v'_z)$  には

1. VCC によって原子が生成, 消滅したり, 内部状態が変化したりしない:

$$\int_{-\infty}^{\infty} W(v_z, v'_z) dv'_z = 1. \quad (3.18)$$

2. 定常状態では Maxwell 分布に従う:

$$\int_{-\infty}^{\infty} W(v_z, v'_z) \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) dv'_z = \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right). \quad (3.19)$$

という性質が要請される.

上式 (3.18), (3.19) を満たす表式の一つとして Keilson-Storer (KS) collision kernel が知られている [58]. KS kernel は

$$W(v_z, v'_z) = \frac{1}{\beta\sqrt{\pi}v_D} \exp\left\{-\left(\frac{v_z - \alpha v'_z}{v_D\beta}\right)^2\right\}, \quad (\beta = \sqrt{1 - \alpha^2}). \quad (3.20)$$

と表され,  $\alpha$  は衝突の強さ (衝突前の速度をどの程度憶えているか) を表すパラメータで memory parameter と呼ばれる.  $\alpha$  は  $0 \leq \alpha < 1$  の範囲で値を取る.

$\alpha = 0$  は衝突前の速度を憶えていないということであり, 式 (3.20) は

$$W(v_z, v'_z; \alpha = 0) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_D} \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right), \quad (3.21)$$

となり, 衝突後の速度が衝突前の速度に依存しない. 衝突前の速度を全く憶えていないこのような衝突は強い衝突 (strong collision) と呼ばれている. 一方で  $\alpha \rightarrow 1$  の極限では一度の VCC による速度変化は小さく, 原子の速度は速度空間における拡散方程式で表されるようになる. このような衝突は弱い衝突 (weak collision) と呼ばれる. 図 3.2 に, いくつかの memory parameter での KS kernel を示す. 初期速度  $v'_z = 200$  m/s とした.

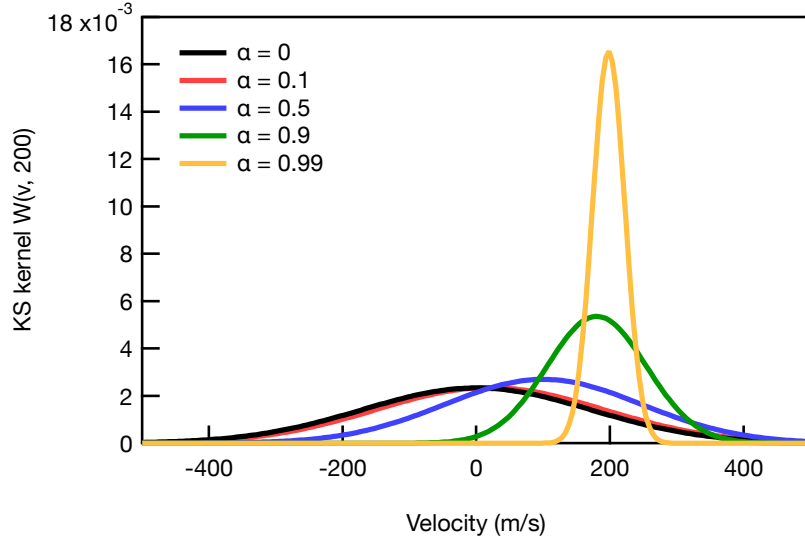


図 3.2 初期速度  $v'_z = 200$  m/s のときの KS kernel  $W(v_z, 200)$ .

KS kernel は解析的に単純な式で表せるという大きな利点がある。しかし、コーティングセル内では様々な強さの VCC が起きていると考えるのが自然であり、単一の memory parameter では原子の速度変化を記述できないと考えられる。実際に、原子間ポテンシャルから計算された collision kernel や実験で測定された collision kernel と KS kernel はあまり一致しないという報告がある [54, 59]。そのため、より実際の速度変化に則した collision kernel も考案されている [55, 59, 60]。

スピン偏極度は原子の速度のレーザー方向成分  $v_z$  と時間  $t$  に依存し、その分布を  $f_{sp}(v_z, t)$  とおく。  $t = 0$  でポンプ光は遮断されているから、新たなスピン偏極の生成を考えなくてよい。またここでは、原子が速度選択光ポンピングされてからセル内壁に衝突する前の速度分布のみを考え、セル内壁との衝突は考えない。よって、  $f_{sp}(v_z, t)$  の時間発展では背景ガスとの VCC による速度変化のみを考えればよく、

$$\frac{\partial f_{sp}(v_z, t)}{\partial t} = -\gamma f_{sp}(v_z, t) + \gamma \int_{-\infty}^{\infty} W(v_z, v'_z) f_{sp}(v'_z, t) dv'_z, \quad (3.22)$$

と計算できる。  $\gamma$  は VCC が起こるレート (VCC レート) を表し、第一項は速度空間において速度  $v_z \sim v_z + dv_z$  からスピン偏極度が失われる成分を、第二項は流入してくる成分を表している。衝突レートは厳密には原子と背景ガスとの相対速度に依存するが、式 (3.22) ではレーザー方向の速度成分しか見えないから、式 (3.22) に現れる  $\gamma$  は原子と背景ガスとの相対速度について平均化された VCC レートと考えられる。すなわち、背景ガスの数密度を  $n_{bg}$ 、VCC 断面積を  $\sigma_c$ 、平均の相対速度を  $\bar{v}$  として、

$$\gamma = n_{bg} \sigma_c \bar{v}, \quad (3.23)$$

と考える。

collision kernel  $W(v_z, v'_z)$  として式 (3.20) の KS kernel を採用した場合の速度分布  $f_{sp}(v_z, t)$  の時間発展を示す。異なる memory parameter における時間発展の違いに注目するため、時間  $t$  を VCC レート  $\gamma$  を



単位として  $\zeta = \gamma t$  と無次元化する. すると式 (3.22) は

$$\frac{\partial f_{sp}(v_z, \zeta)}{\partial \zeta} = -f_{sp}(v_z, \zeta) + \int_{-\infty}^{\infty} dv'_z \frac{1}{\beta \sqrt{\pi} v_D} \exp \left\{ - \left( \frac{v_z - \alpha v'_z}{v_D \beta} \right)^2 \right\} f_{sp}(v'_z, \zeta), \quad (3.24)$$

と変形できる. 図 3.3 から図 3.6 に memory parameter  $\alpha$  が 0, 0.5, 0.9, および 0.99 のときの速度分布の時間発展を示す. いずれのグラフにおいても, 初期の速度分布  $f_{sp}(v_z, 0)$  は中心が 200 m/s で半値全幅がおよそ 35 m/s のローレンツ関数としてある. 時間発展は  $\zeta = 0$  から  $\zeta = \gamma t = 5$  まで  $t = \gamma^{-1}$  刻みでプロットした.

図 3.3 では  $\alpha = 0$  であり, VCC 後には原子は VCC 前の速度を覚えていない. そのため, プロットされている速度分布も, 定常状態を表すマクスウェル分布と初期速度分布に比例するピークとの足し合わせとなっていることが見てとれる.  $\zeta = 4$  つまり  $t = 4/\gamma$  ではほとんど定常状態に至っている.  $\alpha = 0$  の強い衝突の場合には, 定常状態から外れた分布の成分はまだ VCC が起こっていない原子の速度成分を表していると考えられる.

$\alpha = 0.5$  の図 3.4 のグラフも, 一見すると図 3.3 と同じように見える.  $\zeta = 4$  程度の時間でほぼ定常状態に至るのは同じだが, しかし,  $\zeta = 1$  および  $\zeta = 2$  で図 3.3 と異なった振る舞いをしているのがわかる.  $\alpha = 0.5$  では VCC 後にも原子は VCC 前の速度の情報が残っており, 一度の VCC では定常状態には至らない. そのため, 比較的時間の進んでいないときの速度分布は, 強い衝突の場合とは異なり, 定常状態と初期速度分布に比例するピークの足し合わせでは表せない. 実際, 図 3.4 の  $\zeta = 1, 2$  における速度分布を注意深く見ると, 初期速度分布から定常状態に向かって速度空間で拡散するように速度分布が発展していることがわかる.

図 3.5 および図 3.6 では強い衝突との違いが顕著に現れている. 速度空間で速度分布が拡散していくような振る舞いが強く現れており, どちらの場合においても  $\zeta = 5$  でも未だ定常状態には至っていない.



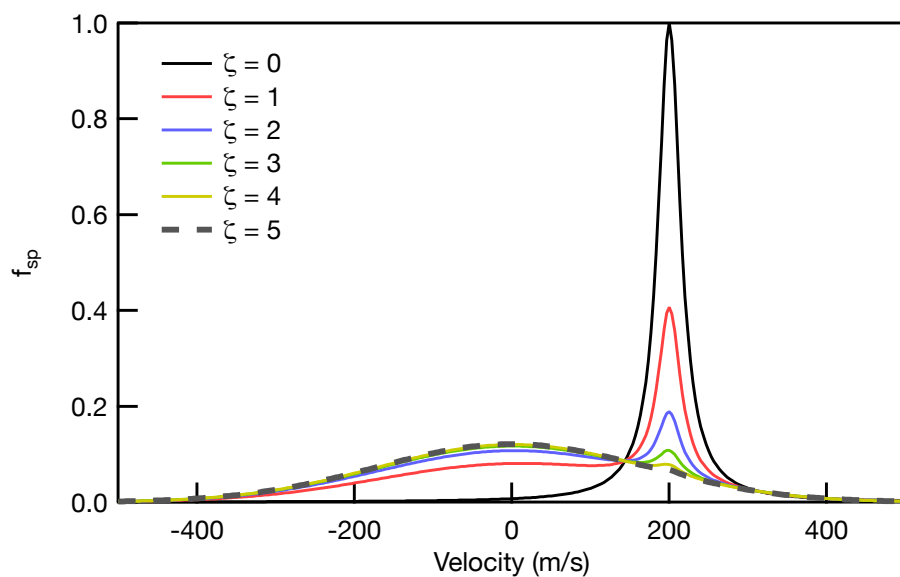


図 3.3 memory parameter  $\alpha = 0$  のときの速度分布の時間発展.

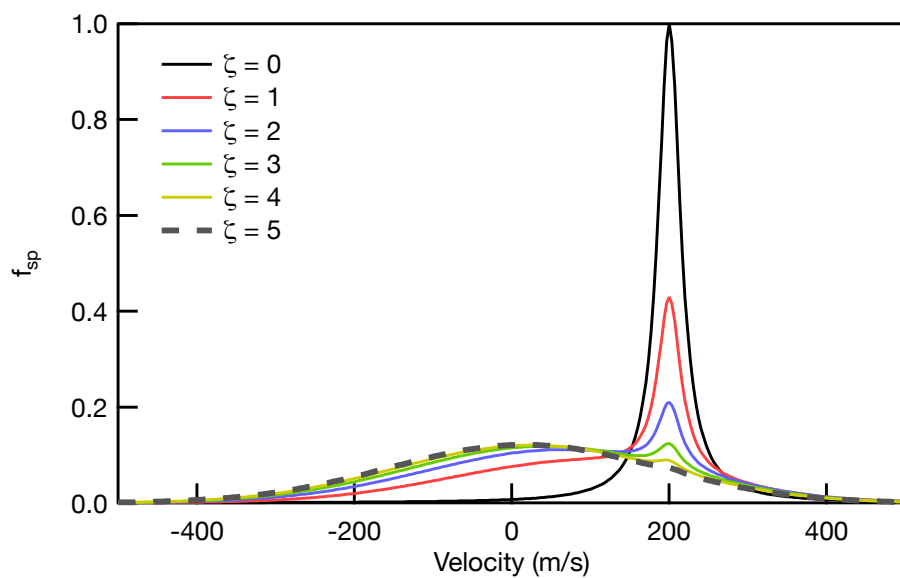


図 3.4 memory parameter  $\alpha = 0.5$  のときの速度分布の時間発展.

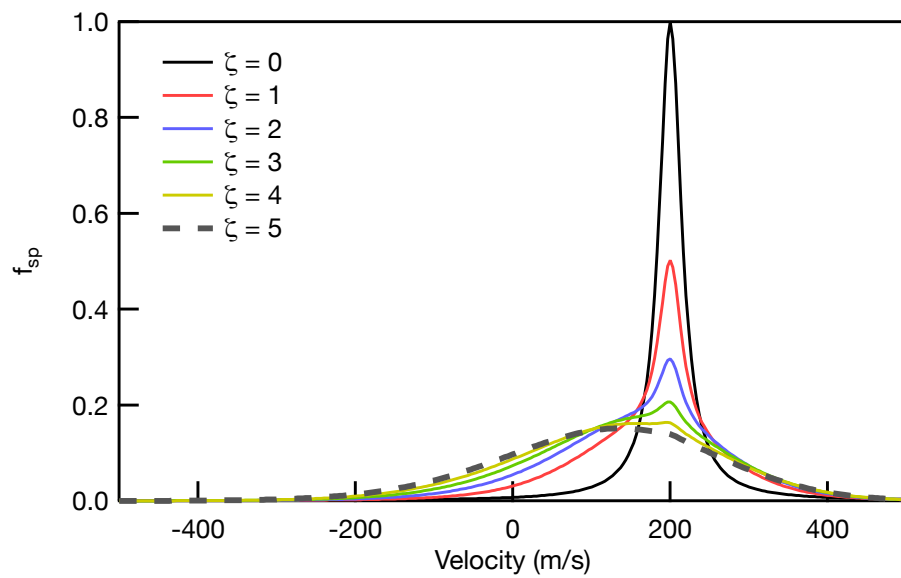


図 3.5 memory parameter  $\alpha = 0.9$  のときの速度分布の時間発展.

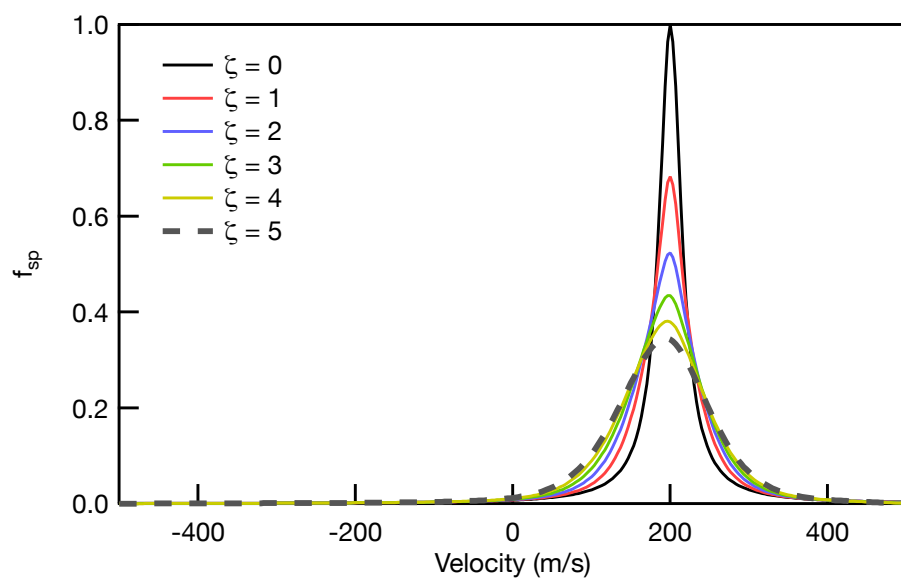


図 3.6 memory parameter  $\alpha = 0.99$  のときの速度分布の時間発展.

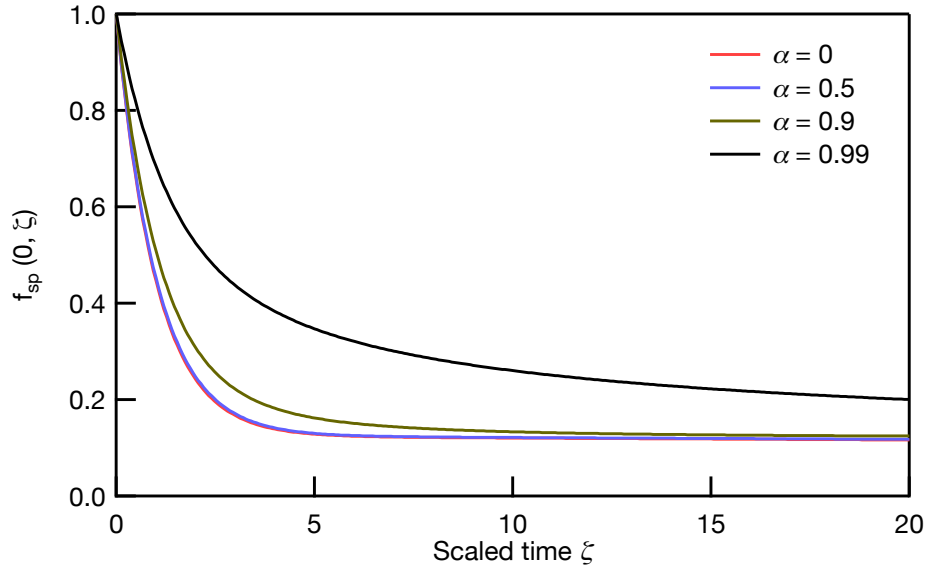


図 3.7  $v_z = 0$  におけるスピン偏極度の時間発展.

本実験ではレーザー方向の速度成分  $v_z = 0$  m/s 付近の原子を選択的に光ポンピングしてスピン偏極する。また、プローブ光で観測しているスピン偏極度も、 $v_z = 0$  m/s 付近のスピン偏極度である。よって、初期速度分布として  $v_z = 0$  m/s にピークを持ち半値全幅が約 35 m/s のローレンツ関数を考えたときの、 $v_z = 0$  m/s のスピン偏極度成分の時間発展を図 3.7 にプロットした。VCC が起こるにつれて定常状態に近づき、memory parameter  $\alpha$  が 1 に近づくほど定常状態に至るのが遅いことがわかる。

### 3.2.3 速度変化衝突による信号の変化

定量的にスピン偏極度の時間発展を解析する上で、ここでは簡単のために strong collision ( $\alpha = 0$ ) の場合の KS kernel を用いて計算を行う。strong collision を仮定して計算すると、もし実際には背景ガスとの衝突が弱い場合には、背景ガスとの衝突レートを過小に見積もることになる。式 (3.21) より、式 (3.22) は

$$\frac{\partial f_{sp}(v_z, t)}{\partial t} = -\gamma f_{sp}(v_z, t) + \frac{\gamma}{\sqrt{\pi}} \exp\left(-v_z^2\right) \int_{-\infty}^{\infty} f_{sp}(v'_z, t) dv'_z, \quad (3.25)$$

となる。いまは衝突によるスピン緩和は考えていないから、 $f_{sp}(v_z, t)$  を全速度にわたって積分すると時間に依らずに一定であり、 $\int_{-\infty}^{\infty} f_{sp}(v'_z, t) dv'_z = \eta$  とおくと、

$$\frac{\partial f_{sp}(v_z, t)}{\partial t} = -\gamma f_{sp}(v_z, t) + \frac{\gamma\eta}{\sqrt{\pi}v_D} \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right), \quad (3.26)$$

が導ける。この微分方程式 (3.26) を解くと、

$$f_{sp}(v_z, t) = (1 - e^{-\gamma t}) \frac{\eta}{\sqrt{\pi}v_D} \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_D^2}\right) + e^{-\gamma t} f_{sp,0}, \quad (3.27)$$

が得られる。ここで  $f_{sp,0} \equiv f_{sp}(v_z, 0)$  とした。

スピン偏極度の速度分布  $f_{sp}(v_z, t)$  が式 (3.27) で記述できれば、プローブ光で検出している信号の VCC による変化  $S_c(t)$  は

$$S_c(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} f_{sp}(v_z, t) \times f_{probe}(v_z) dv_z, \quad (3.28)$$

と書ける。ここで、 $f_{probe}(v_z)$  はプローブ光が検出できるスピン偏極度の測定分布を表している。 $f_{probe}(v_z)$  は原子がプローブ光を吸収するときの速度依存性に比例する。つまり、 $f_{probe}(v_z)$  はプローブ光に対する吸収断面積  $\sigma_{probe}(v_z)$

$$\sigma_{probe}(v_z) = \frac{\pi r_e c f \gamma_{probe}}{(\gamma_{probe}/2)^2 + (kv_z)^2}, \quad (3.29)$$

に比例する。 $r_e, c, f, k$  はそれぞれ、古典電子半径、光速、振動子強度、波数である。古典電子半径は  $r_e = \frac{\mu_0 e^2}{4\pi m_e}$  ( $\mu_0$ : 磁気定数 (真空の透磁率),  $e$ : 素電荷,  $m_e$ : 電子質量) で定義されている。 $\gamma_{probe}$  はプローブ光に対する均一幅であり、プローブ光強度  $I_{probe}$  を用いて

$$\gamma_{probe} = \gamma_n \sqrt{1 + \frac{I_{probe}}{I_s}}, \quad (3.30)$$

と計算できる。ここで、 $\gamma_n$  は自然幅であり、 $^{85}\text{Rb}$  の D2 線では  $\gamma_n = 2\pi \times 6 \text{ MHz}$  である。また、 $I_s$  は飽和光強度である。

### 3.2.4 プローブ光からの離脱による信号の減衰

これまで速度変化衝突による信号の変化を議論してきたが、プローブ光の信号は速度変化衝突だけでなく、スピン偏極原子がプローブ光から離脱することによっても減衰する。

ポンプ光によってスピン偏極された原子の  $z$  方向の速度はゼロであるが、レーザーと垂直な方向の速度  $v_r$  の分布は Maxwell 分布に従う。簡単のため、ポンプ光のビーム径は無限に小さく、 $t = 0$  において原子はセルの中央でスピン偏極されるとする。スピン偏極原子が速度  $v_r \sim v_r + dv_r$  を持つ確率  $G(v_r)dv_r$  は

$$G(v_r)dv_r = \frac{2v_r}{v_D^2} \exp\left\{-\left(\frac{v_r}{v_D}\right)^2\right\} dv_r, \quad (3.31)$$

与えられる。 $v_D$  は最確速度と呼ばれ、ボルツマン定数  $k_B$ 、温度  $T$ 、原子の質量  $m$  を用いて

$$v_D = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}, \quad (3.32)$$

と書ける。今は衝突による速度変化は別の要因に含めているから、スピン偏極原子は一定の速度で運動してプローブ光領域から抜けると考えれば良い。したがって、時刻  $t$  でセルの中央から距離  $r \sim r + dr$  にスピン偏極原子が存在している確率  $\rho(r, t)dr$  は

$$\rho(r, t)dr = \frac{2r}{(v_D t)^2} \exp\left\{-\left(\frac{r}{v_D t}\right)^2\right\} dr, \quad (3.33)$$

と計算できる。

室温ではアルカリ原子による光の吸収はあまり強くなく光学的深さは1よりも十分小さい。よって、プローブ光の吸収量はプローブ光の強度  $I_{probe}(r)$  と  $\rho(r, t)dr$  の積に比例する。プローブ光からの離脱による信号  $S_{esc}(t)$  は各  $r$  におけるプローブ光の吸収量を全域に渡って積分したものに比例して、

$$S_{esc}(t) \propto \int_0^{\infty} I_{probe}(r) \times \rho(r, t) dr. \quad (3.34)$$

ここで、 $I_{probe}(r)$  はプローブ光の強度プロファイルで、本実験ではガウス型のプロファイル

$$I_{probe}(r) \propto \exp \left\{ - \left( \frac{\sqrt{2}r}{\phi_{probe}/2} \right)^2 \right\}, \quad (3.35)$$

で表せる。 $\phi_{probe}$  は強度がピーク強度の  $1/e^2$  になる半径である。式 (3.33) および式 (3.35) を式 (3.34) に代入すると

$$S_{esc}(t) \propto \frac{1}{\phi_{probe}^2 + 8v_D^2 t^2}, \quad (3.36)$$

が得られる。

式 (3.27-3.30) を用いると速度変化衝突による寄与  $S_c(t)$  を計算でき、プローブ光で検出している信号  $S(t)$  の時間発展は式 (3.36) と合わせて、

$$S(t) \propto S_{esc}(t) \times S_c(t), \quad (3.37)$$

で計算できる。

### 3.2.5 速度変化衝突レート測定の実験セットアップと解析

本測定での実験条件の詳細を述べる。

光学系を図 3.8 に示す。ECDL は散乱実験と同様に偏光分光を利用して周波数安定化しているが、それに加えて、AOM を用いて  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移から 170 MHz 低い周波数に合わせている。ECDL から来た光はポンプ光とプローブ光に PBS で分けられ、両者ともに AOM で 170 MHz 高く離調される。こうすることによって、ポンプ光とプローブ光の周波数は  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移に一致した上で、AOM による高速光スイッチが可能となる。プローブ光は 1/4 波長板によって円偏光にされた上で、図 3.8 では左からパラフィンコーティングセルに入射している。ポンプ光は 2 枚のレンズによってビーム系を絞られた上で、やはり円偏光でパラフィンコーティングセルに入射している。セルは磁気シールド内にあり、ヘルムホルツコイルによって 0.4 G の縦磁場が印加されている。ポンプ光とプローブ光の強度プロファイルを CMOS カメラで測定したところ、それぞれの  $1/e^2$  ビーム径は 0.053 cm と 0.38 cm であった。ポンプ光パワーは 300  $\mu$ W、プローブ光パワーは 10  $\mu$ W である。残留ガスとの VCC による偏極度への寄与を測定したいから、ポンプ光はごく短い間だけ照射する。本実験ではポンプ光の照射時間は  $\tau_p = 1 \mu$ s とした。また、プローブ光でスピン偏極しないように、約 150  $\mu$ s で遮断する。スピン偏極度の検出は、円偏光のプローブ光を入射して透過光パワーを測定した後、逆向きの円偏光のプローブ光で同様に測定し、差分を取ることで行った。

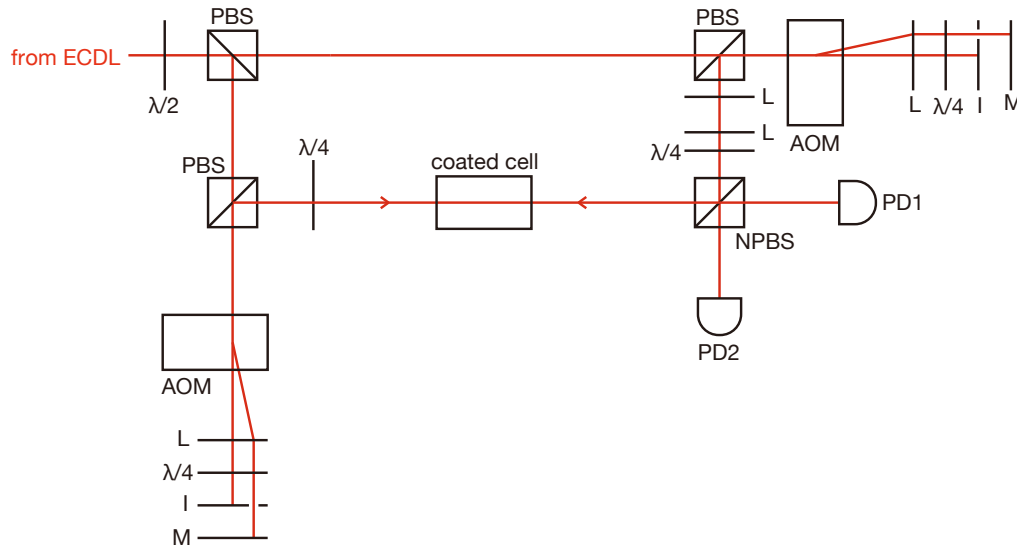


図 3.8 VCC レート測定的光学系. M: ミラー, PBS: 偏光ビームスプリッター, NPBS: 無偏光ビームスプリッター, AOM: 音響光学変調器,  $\lambda/2$ : 1/2 波長板,  $\lambda/4$ : 1/4 波長板, L: レンズ, I: アイリス, PD: フォトダイオード.

VCC レート測定の例を図 3.9 に示す. 青点はコーティングなしセルでの測定データ, 赤点は後述するパラフィンコーティングセル#2 (ライプニング後) での測定データを表している. それぞれのデータの縦軸は  $t = 0$  での値で規格化してある. パラフィンコーティングセルでの信号は, コーティングなしセルで測定された信号に比べて減衰が速いことが明らかであり, VCC レートが高いことが伺える. 図中の破線は VCC レート  $\gamma = 0$  と仮定した場合に式 (3.37) で計算した信号である. ここでは, ポンプ光のパルス幅  $\tau_p = 1 \mu\text{s}$  を考慮して,  $\int_{-\tau_p}^0 S(t-t')dt'$  を計算して示している. コーティングなしセルでの測定結果とよく似た時間発展を再現できている. 一方で黒い実線はパラフィンコーティングセルの測定データに対するフィッティング曲線である. フィッティングの際のパラメータは VCC レート  $\gamma$  で, パラフィンコーティングセル#2 (ライプニング後) では  $\gamma = 7.2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$  と求められた.

### 3.2.6 平均自由行程と圧力

文献 [54] を参考に, VCC の断面積を  $\sigma_c = 1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$  と仮定する. また, 文献 [25, 38, 39] より, コーティングセル内残留ガスは水素やメタンなどの比較的軽い元素が主だと考え, Rb 原子と残留ガスとの平均相対速度を  $\bar{v} = 1 \times 10^5 \text{ cm/s}$  と仮定する. 背景ガスの密度を  $n$  とすると, VCC レート  $\gamma_c$  は

$$\gamma = n\sigma_c\bar{v} \tag{3.38}$$

と書ける. Rb 原子の平均自由行程  $\lambda_{Rb}$  は

$$\lambda_{Rb} = \frac{1}{(n\sigma_c)} = \frac{\bar{v}}{\gamma}, \tag{3.39}$$

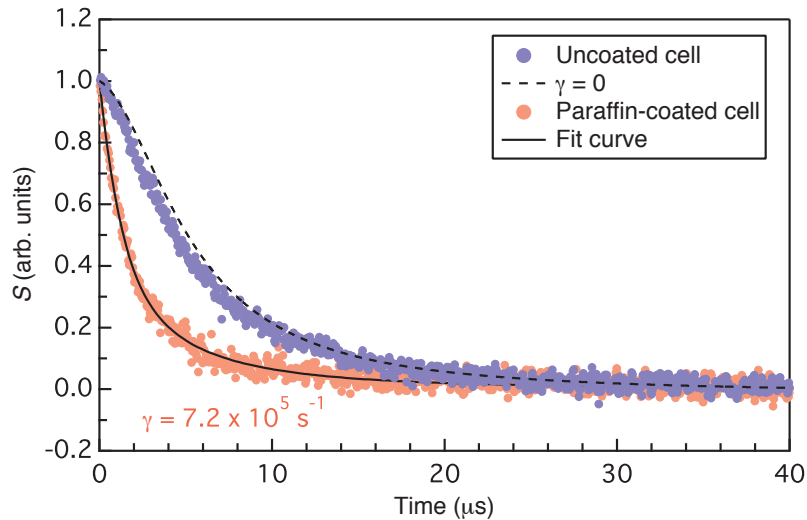


図 3.9 コーティングなしセルとパラフィンコーティングセル#2（ライプニング後）での VCC 測定.

で見積もれる。背景ガスの圧力  $p$  は、理想気体の状態方程式より、

$$p = \frac{\gamma}{\sigma_c \bar{v}} k_B T, \quad (3.40)$$

と見積もれる。ライプニング後のパラフィンコーティングセル#2 の  $\gamma = 7.2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$  を代入すると、平均自由行程  $\lambda_{Rb} = 1.4 \text{ mm}$ 、圧力  $p = 3.0 \text{ Pa}$  と見積もれる。

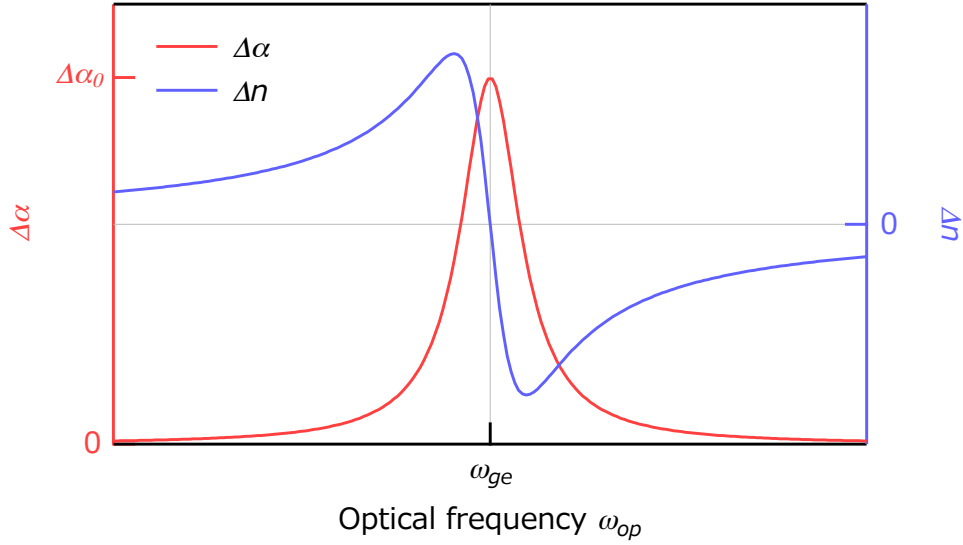
### 3.3 緩和時間測定

前節ではコーティングセル内の速度変化衝突（VCC）レートを測定する方法について述べた。次に本節ではコーティングセル内アルカリ金属原子のスピンの緩和時間の測定について述べる。コーティングセルは作製方法が複雑であり、作製者の技量や作製時の状況によっては例えばスピンの緩和時間が短いセルができてしまう可能性もある。そのため、本研究でコーティングセル内原子の VCC を調べるにあたっては、適切に作製されてスピンの緩和時間の長いコーティングセルを対象に研究が行えているかは重要である。そこで、本研究では参考文献 [61] と同様にしてコーティングセル内 Rb 原子の緩和時間測定を行った。この方法ではスピン偏極原子による磁気光学回転を利用してスピン偏極度をプローブする。

#### 3.3.1 磁気光学回転

円偏光のポンプ光をセルに照射すると、Rb 原子気体がスピン偏極される。ここに直線偏光のプローブ光を入射することを考える。

第 3.2.1 節で説明したように、原子アンサンブルがスピン偏極されると光の吸収量も偏極度に応じて変化する。直線偏光は強度の等しい  $\sigma^+$  偏光と  $\sigma^-$  偏光の成分に分けて考えることもできる。よって、スピン偏極原子を直線偏光が通るときには、 $\sigma^+$  成分と  $\sigma^-$  成分で吸収量  $\alpha_+$ 、 $\alpha_-$  が異なる。吸収量の差  $\Delta\alpha = \alpha_+ - \alpha_-$  は、式 (3.17) と同様にスピン偏極度  $\langle m_F \rangle$  に比例する。第 3.2.1 節では簡単のために光の周


 図 3.10 吸収率の差  $\Delta\alpha$  と屈折率の差  $\Delta n$  の関係.

波数が共鳴周波数と一致する場合を考えていたが、共鳴周波数付近での光の周波数に対する  $\Delta\alpha$  の応答を考えると、式 (2.37) と同じ形で、

$$\Delta\alpha(\omega_{op}) = \Delta\alpha_0 \frac{(\gamma_{se}/2)^2}{(\gamma_{se}/2)^2 + (\omega_{op} - \omega_{ge})^2}, \quad (3.41)$$

と表せる。ここで  $\Delta\alpha_0$  は共鳴周波数での吸収量の差を表す。

ここで、原子と電場との相互作用を考えると光の吸収と屈折は互いに独立な現象ではなく、クラマース・クローニッヒの関係式で表せるような関係がある [62, 63]。よって、 $\sigma^+$  成分と  $\sigma^-$  成分が感じる屈折率  $n_+, n_-$  の差  $\Delta n$  の周波数応答は、

$$\Delta n(\omega_{op}) = \Delta\alpha_0 \frac{c}{\omega_{ge}} \frac{\gamma_{se}}{2} \frac{\omega_{ge} - \omega_{op}}{(\gamma_{se}/2)^2 + (\omega_{op} - \omega_{ge})^2}, \quad (3.42)$$

と分散型の関数で表せて、 $\Delta n$  も  $\langle m_F \rangle$  に比例する。

$\Delta n$  は光の周波数  $\omega_{op} = \omega_{ge}$  のときにゼロで、 $\omega_{op} = \omega_{ge} \pm \frac{\gamma_{se}}{2}$  で極大あるいは極小をとる。つまり、入射している直線偏光のプローブ光の周波数を共鳴周波数からずらすと、 $\sigma^+$  成分と  $\sigma^-$  成分とで感じる屈折率が異なる。それゆえ、セルを通過した光の  $\sigma^+$  成分と  $\sigma^-$  成分では位相差  $\phi_{+-}$  が生じる。セルの長さを  $L$  とすると、

$$\phi_{+-} = \frac{\omega_{op} L}{c} \Delta n, \quad (3.43)$$

と計算できる。セルに入射する前の直線偏光の偏光面の角度を基準にして、セルの通過によって円偏光成分間で  $\phi_{+-}$  の位相差が生じると通過後の光の偏光面の角度は、

$$\varphi_{pol} = \frac{\phi_{+-}}{2} = \frac{\omega_{op} L}{2c} \Delta n \propto \langle m_F \rangle, \quad (3.44)$$



となる。このようにスピン偏極度に応じて直線偏光の偏光面が回転する現象を磁気光学回転と呼ぶ。磁気光学回転の回転角を測定すればスピン偏極度を測定できる。プローブ光は原子によって吸収もされるため、実際にはセル通過後の偏光は楕円偏光であり、長軸の方向が  $\varphi_{pol}$  だけ回転している。

### 3.3.2 実験セットアップ:緩和時間測定

本測定でもポンプ光やプローブ光のパスやビーム径は VCC レート測定と同様である。ポンプ光はパルス状ではなく、セル内のスピン偏極度が定常状態になるまで照射し、時刻  $t = 0$  で遮断する。ポンプ光遮断後のスピン偏極の時間発展を上述の磁気光学回転を通じて観測し、スピン緩和時間を測定する。ポンプ光の周波数は  $^{85}\text{Rb}$  D2 線  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移に合わせ、プローブ光の周波数は負に 170 MHz 離調してセルに入射する。VCC レート測定と同様に、セルは磁気シールド内にありヘルムホルツコイルで 0.4 G の縦磁場が印加されている。ポンプ光のパワーはコーティングセルごとに異なるものの、プローブ光パワーは  $5\mu\text{W}$  とした。

後述するコーティングセル#1 (ライブニング後) で緩和時間測定した例を図 3.11 に示す。横軸はポンプ光を遮断してからの時間、縦軸は磁気光学回転によるプローブ光偏光面の回転角である。文献 [61] と同様に、ポンプ光遮断後に回転角が一時的に大きくなり、その後小さくなる振る舞いを見せている。これは次のような理由によると考えられる。今、ポンプ光の周波数は  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移に合わせてあり、 $F = 3$  基底状態の磁気副準位間でスピン偏極が生成されている。それに加えてハイパーファインポンピングも起こり、超微細準位間で  $F = 2$  に占有数が偏る (ハイパーファイン偏極) ばかりか、 $F = 2$  の磁気副準位間においてもスピン偏極が生成される。このように偏極された原子がスピン緩和する際、ハイパーファイン偏極は緩和しても磁気副準位間のスピン偏極は保たれる可能性が考えられる。すると、 $F = 3$  の磁気副準位間のスピン偏極に感度をもつ今回のような測定ではスピン偏極度が一度増えるような振る舞いを見せる、と考えられる。

図中に示している黒線はフィッティング曲線であり、2つの指数関数の足し合わせ

$$f(t) = f_0 + A_f \exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) + A_s \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right), \quad (3.45)$$

でフィットしてある。 $\tau_f$  が速い成分の緩和時間、 $\tau_s$  が遅い成分の緩和時間を表している。本実験では、遅い成分の緩和時間  $\tau_s$  に着目して議論する。

## 3.4 パラフィンコーティングセルの作製

本実験で測定したパラフィンコーティングセルは文献 64 を参考に 7 個作製した。どのコーティングセルもパイレックスガラスでできた円筒形のセルで (図 3.12)、側面に枝管が接続されている。枝管とセルの接続部の内径は細くくびれていて、セルから見た枝管の開口部を小さくしてある。これはセル本体と枝管部を出来るだけ隔離するためである。枝管部には固体のルビジウムが存在し、昇華して気体となった Rb はスピン偏極していない。そのため、セル内の原子と枝管部の原子とのやり取りは強いスピン緩和の原因となる。表 3.1 に各々のセルの寸法を示す。

コーティングした物質は Sasol Wax 社製の Sasolwax®H1 である。ただし、コーティング前に分留し、

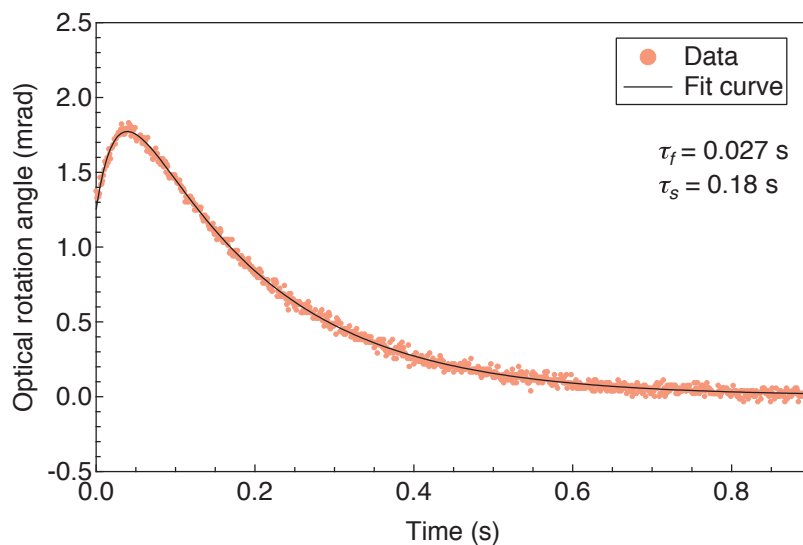


図 3.11 ライプニング後のコーティングセル#1 での緩和時間測定.



図 3.12 パラフィンコーティングセル#1 の写真. 円筒形のセルに細いガラス管 (枝管) が接続されている. 枝管はほぼ直角に曲がっていて, 曲がり角の付近にルビジウムが付着しているのが見える.

表 3.1 測定に用いたコーティングセルの寸法

	直径 (mm)	長さ (mm)
#1	17.0	24.4
#2	17.0	27.2
#3	17.0	27.4
#4	17.0	25.0
#5	17.0	24.3
#6	17.0	23.7
#7	17.0	24.3

220°C では蒸発せず，240°C で蒸発した成分を以下の手順でコーティングした．上述のパイレックスガラスセルは枝管を介して真空装置につながる（図 3.13）． $1 \times 10^{-4}$  Pa よりも低い圧力まで排気できたら，図 3.13 中の赤枠の部分で 420°C で 4 時間ベーキングし，不純物や表面の水分を追い出す．その後，ガラス管の外から磁石で鉄の棒（iron）を操り，分留したパラフィンをセル側に移動させる．パラフィンを移動させたら，セルをパラフィンと一緒に seal point A で真空系からバーナーワークで切り離す．切り離れたセルと分留したパラフィンを 380°C あるいは 400°C で温め，パラフィンを内壁に蒸着する．

パラフィンを蒸着したセルは図 3.14 のようなガラス配管で真空系に再び接続する．この時点ではセルはまだ真空中に排気されない．セルにつながったガラス管の部分にもパラフィンが蒸着されていて，この後ルビジウムを封入する際に熱するとルビジウムと融けた（あるいは気体の）パラフィンが反応してしまう．そのため，この時点でセル本体以外の箇所をよく熱してパラフィンを飛ばし，seal point B よりも下部に集めて切り離してしまう．パラフィンを切り離せたら，セルにつながる breakable seal と Rb ampule の breakable seal を磁石で鉄棒を操って破壊する．するとセル内が真空中に排気できるので，圧力が  $1 \times 10^{-4}$  Pa よりも低くなったら天然存在比の Rb 金属を枝管に付着させ，セルを切り離して封入する．

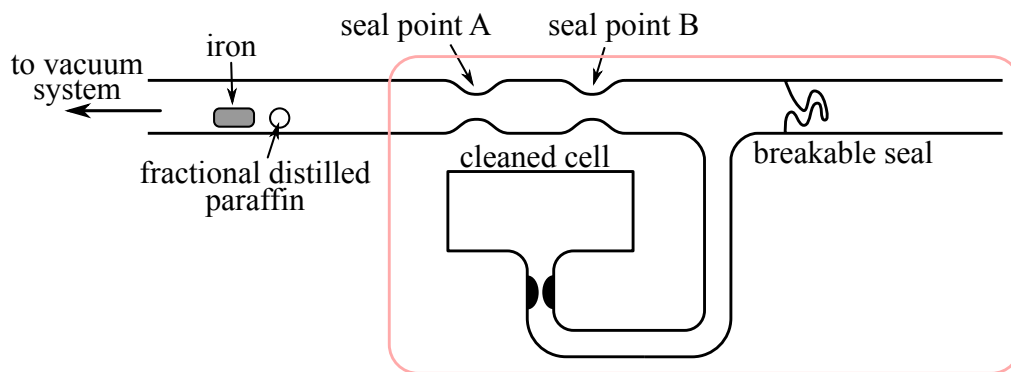


図 3.13 パラフィン蒸着のためのガラス配管．

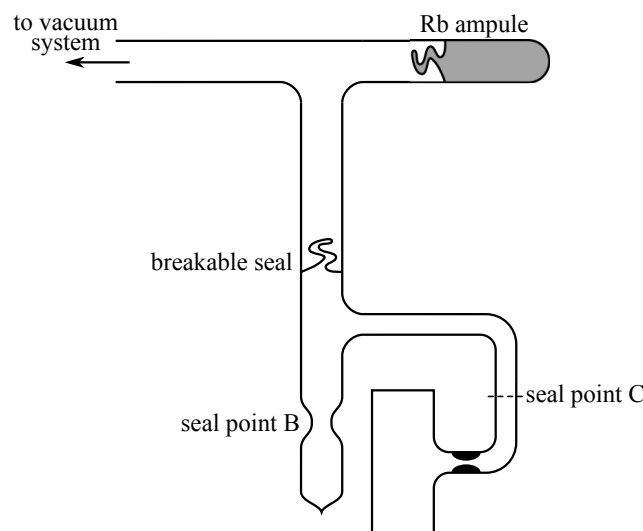


図 3.14 ルビジウム封入のためのガラス配管．

以上の工程でルビジウムを封入したパラフィンコーティングセルを作製した。しかし一般には、ここまでの工程だけではアルカリ金属原子の十分な蒸気密度が得られないことが多い [18, 61, 65]。そこでセルをパラフィンの融点 ( $\sim 100^\circ\text{C}$ ) よりも低い温度で長時間温め、蒸気密度を高くする工程がよく施される。この工程は“ライプニング (ripening)”などと呼ばれている。ライプニングの際に生じている現象の詳細は明らかではないものの、ライプニングによって緩和時間が長くなることが報告されている [61]。

本研究では図 3.15 のような装置を用いて、 $80^\circ\text{C}$  で 10 時間ライプニングした。セル本体はシリコンオイルに浸し、容器に巻きつけたリボンヒーターでシリコンオイルを  $80^\circ\text{C}$  で温める。このとき、セル本体に Rb 原子が凝集しないように、シリコンオイルの入った容器ごと  $75^\circ\text{C}$  に温めたオーブンに入れ、セルの枝管を本体よりも少し低い温度に保ち枝管に Rb を集める。

ただ、本研究で作製したコーティングセルはライプニング前でも測定に十分な蒸気密度であったため、ライプニングの前後で緩和時間測定と VCC レート測定を行った。

### 3.5 結果と議論

作製した 7 個のセル全てにおいて、ライプニング前でも測定に十分な蒸気圧があったので、ライプニングの前に VCC レート  $\gamma$  と緩和時間  $\tau_s$  を測定した。ライプニング後にも VCC レート  $\gamma$  と緩和時間  $\tau_s$  を測定し、ライプニングによる影響を評価した。

#### 3.5.1 VCC レート測定結果

図 3.16 にライプニング前後の VCC レート測定結果を示す。使用した材料や作製工程はどのセルでも同じものの、コーティングセルによって VCC レートが大きくばらついていることがわかる。また、どのセルにおいてもライプニングによって VCC レートが高くなっている。ライプニングによる VCC レートの増加率もセルごとにばらついている。

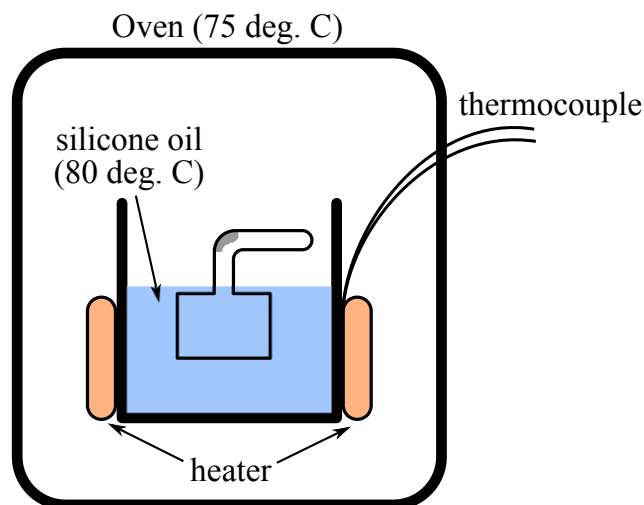


図 3.15 パラフィンコーティングセルのライプニング。

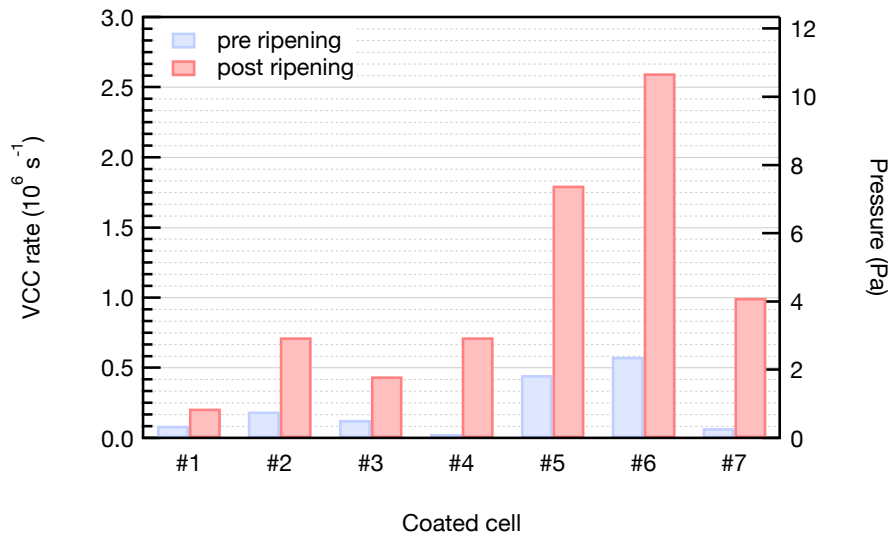


図 3.16 ライプニング前後の VCC レート。

ライプニング後で一番低い VCC レートは、セル#1 の  $2.1 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$  である。これに対応する平均自由行程  $\lambda_{Rb}$  は 5 mm と見積られて、典型的なコーティングセルの大きさよりも短い。今回測定したパラフィンコーティングセルの VCC レートを平均すると  $1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$  程度であり、平均自由行程は 1 mm に対応する。すなわち、パラフィンコーティングセル内のルビジウム原子と背景ガスとの衝突は無視できず、壁から壁に到達する前に背景ガスと衝突を繰り返している、ということの意味している。

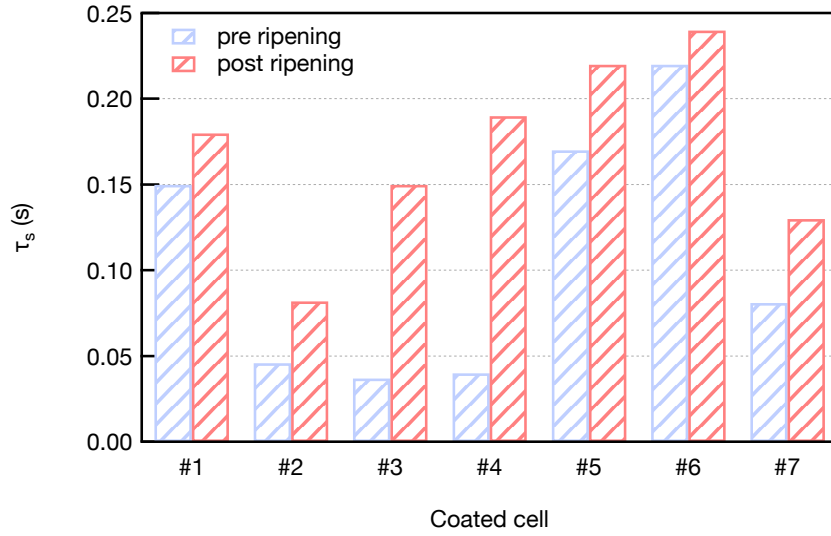
式 (3.40) で見積もった背景ガス圧力を図 3.16 の右軸で表した。パラフィンコーティングセル内の背景ガス圧力は数 Pa 程度であることがわかる。数 Pa 程度の圧力というのは第 3.1 節で述べたような分光法では検出は容易ではない。しかし、平均自由行程がセルの大きさよりも短いことからわかるように、背景ガスとの速度変化衝突を無視できるかという観点からは数 Pa の圧力は高いと言える。

### 3.5.2 スピン緩和時間測定結果

図 3.17 にライプニング前後の遅い緩和時間  $\tau_s$  を示す。VCC レートと同様に、緩和時間もセルごとのばらつきが大きい。また、どのセルでもライプニングによって緩和時間が長くなっている。

### 3.5.3 VCC レートと緩和防止性能

上述したように、背景ガスとの衝突は無視できず、ルビジウム原子の平均自由行程はセルの大きさよりも短い。そのため、緩和時間が長くなった要因が VCC レートの増加にあるのか、それともコーティングの緩和防止性能が向上したのかを考える。緩和防止性能を考える際、ルビジウム原子がスピン緩和するまでにコーティングと何回衝突できるかという回数を使うと便利である。ここではこの回数を緩和衝突回数と呼ぶことにし、2通りの方法で計算してみる。


 図 3.17 ライプニング前後の遅い緩和時間  $\tau_s$ .

1つ目の計算では、VCC を無視して Rb 原子が壁から壁へ自由に運動とした場合の緩和衝突回数を

$$N = \frac{v_m A}{4V} \times \tau_s, \quad (3.46)$$

で計算する。この式の右辺はルビジウム原子が壁と衝突するレートとスピン緩和時間を乗じていて、 $v_m = 2v_D/\sqrt{\pi}$  はルビジウム原子の平均速さ、 $A$  はコーティングセル内壁の表面積、 $V$  はコーティングセルの容量である。

もう1通りの計算では、ルビジウム原子がコーティングセル内を拡散的に運動するとして、原子の運動を拡散方程式で表して緩和衝突回数を計算する。このときの拡散係数を2通りの方法で見積もる。拡散係数  $D$  は VCC レート  $\gamma$  から

$$D = \frac{\lambda_{Rb} v_m}{3}, \quad (3.47)$$

で見積もる。

拡散方程式による原子の運動の記述について簡単に述べる。簡単のために、 $x, y, z$  方向で等方的と仮定する（これは、立方体のセルにおける緩和衝突回数  $N_r$  を考えることに等しい）。スピン偏極した原子が壁に向かう流束を  $J_+$ 、逆を  $J_-$  とすれば、

$$J_- = \left(1 - \frac{1}{N_r}\right) J_+, \quad (3.48)$$

と書ける。また、

$$\begin{cases} J_+ = n_{Rb} v_m \left( \frac{1}{4} P - \frac{D}{2v_m} \frac{\partial P}{\partial x} \right), \\ J_- = n_{Rb} v_m \left( \frac{1}{4} P + \frac{D}{2v_m} \frac{\partial P}{\partial x} \right), \end{cases} \quad (3.49)$$

である。ここで  $n_{Rb}$  はアルカリ原子の密度、 $P$  は偏極度である。偏極度については、

$$\frac{\partial P}{\partial t} = D \frac{\partial^2 P}{\partial x^2}, \quad (3.50)$$

が成り立つ。表面における偏極度の勾配を考えると、次の境界条件が与えられる。

$$\frac{\partial P}{\partial x} = \frac{-vP}{2N_r(2-1/N_r)D} = \frac{-vP}{2(2N_r-1)D}. \quad (3.51)$$

初期偏極度は空間的に一様であるとすれば、偏極度  $P$  は

$$P = A \cos(k_d x) \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right). \quad (3.52)$$

と計算できる。 $A$  は定数、 $k_d$  は拡散波数ベクトルである。 $y, z$  方向についても同様だから、式 (3.50), (3.52) より

$$\frac{1}{\tau_s} = 3Dk_d^2. \quad (3.53)$$

式 (3.51), (3.52) より

$$k_d \tan\left(\frac{k_d L}{2}\right) = \frac{v_m}{2N_r(2-1/N_r)D}. \quad (3.54)$$

ここで  $L$  はセルの辺の長さである。式 (3.53) を代入して、

$$N_r = \sqrt{\frac{3\tau_s}{D}} \frac{v_m}{4 \tan\left(\frac{L}{\sqrt{12\tau_s D}}\right)} + \frac{1}{2}, \quad (3.55)$$

となる。

背景ガスとの衝突レートが十分小さい場合には、拡散係数  $D$  はセルの大きさ  $L$  よりも十分大きくなって、 $\tan(L/\sqrt{12\tau_s D}) \approx L/\sqrt{12\tau_s D}$  と近似できる。すると式 (3.55) は

$$N \approx \frac{3v_m}{2L} \tau_s + \frac{1}{2} \approx \frac{3v_m}{2L} \tau_s, \quad (3.56)$$

と近似でき、式 (3.46) と一致する。

作製したコーティングセルでは、オーダーとしては  $\lambda_{Rb} = 1 \text{ mm}$ ,  $\tau_s = 0.1 \text{ s}$ ,  $L = 20 \text{ mm}$  で、 $v_m = 3 \times 10^2 \text{ m/s}$  とすると、

$$\frac{L}{\sqrt{12\tau_s D}} \approx 0.06, \quad (3.57)$$

と計算でき、式 (3.56) で十分近似できる。つまり、背景ガスとの VCC レートは  $1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$  程度と高いものの、スピン緩和時間に大きな影響は与えないと言える。またこのことから、ライプニングによって長くなった緩和時間は、VCC レートが高くなったことによる影響ではなくて、コーティングの緩和防止性能が向上したことによるものと言える。

### 3.6 まとめ: パラフィンコーティングセル内の速度変化衝突レートの測定

本実験では、複数のパラフィンコーティングセルを用意し、緩和時間および VCC レートを測定した。

従来の分光的手法ではパラフィンコーティング表面での VCC と背景ガスとの VCC との区別が困難であったため、本研究で背景ガスとの VCC だけを検出するような手法を考案した。本手法では、セル内



の原子を速度選択的にスピン偏極し、VCCによるスピン偏極度の変化を時間分解測定した。原子がコーティング表面に衝突する前に測定を終えることで、コーティング表面とのVCCと区別した。

用意したパラフィンコーティングセルで背景ガスとのVCCレートを測定したところ、セルによるばらつきは大きかったものの、VCCレートは平均で $1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ であった（後述のライプニング後）。これは平均自由行程ではおよそ1 mmに対応し、セルの典型的な大きさよりも短い。したがって、従来はアルカリ原子の背景ガスとの衝突は無視されてきたが、コーティングセルでは背景ガスとの衝突は無視できないことを明らかにした。

セルを80°C程度で長時間温めるライプニングと呼ばれる行程によって、VCCレートが高くなることも判明した。ライプニングはコーティングセルを使用する際に標準的な過程で、アルカリ金属蒸気密度を高くする目的で行われる。しかし、反応性の高いアルカリ金属雰囲気で高温にするため、アルカリ金属と反応してガスを生成する疑いがある。測定の結果、全てのセルにおいてライプニングによってVCCレートは高くなっており、ライプニングにおいてコーティングとアルカリ金属が反応したと考えられる。

VCCレートが従来考えられていたよりも高かったため、背景ガスとのVCCを考慮して緩和防止性能を評価した。背景ガスとの衝突は無視できないものの、壁との衝突レートを小さくするほどはVCCレートは高くなく、従来の緩和防止性能評価と変わらない結果となった。



## 第 4 章

# 拡散接合サファイアセル内背景ガスの高温特性

アルカリ金属原子を用いた実験を行う上で、単結晶サファイアは魅力ある特性を持った物質である。一つは、反応性の極めて高いアルカリ金属原子に対して高温でも耐えうるということである。この特性は高い蒸気密度のアルカリ金属蒸気が必要な実験に応用されている。また一つは、アルカリ金属原子とサファイア表面とで他の物質とは異なった相互作用が現れることであり、様々な基礎物理実験に用いられている。これらのサファイア-アルカリ金属原子相互作用に着目した実験においても、サファイア表面の温度依存性を測定するためや、得られる信号を大きくするために実験系を高温にすることがある。本実験では単結晶サファイアでできたアルカリ金属蒸気セルを作製し、長時間高温にした。アルカリ金属蒸気を封入したサファイアセルを高温にした時の背景ガスを、第 3 章で考案した速度変化衝突レート測定で評価した。

### 4.1 単結晶サファイア

“サファイア”といえば日常的には青色の宝石を指すのが普通である。サファイアは酸化アルミニウム（アルミナ、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ ）から成り、結晶構造は三方晶系のコランダム型結晶である。酸化アルミニウムの結晶は無色透明であるが、不純物としてチタンイオンや鉄イオンなどがドーピングされると青色を呈する。現在では人工的に生成された不純物のない無色の酸化アルミニウム結晶もサファイアと呼ばれる。あるいは、宝石のサファイアと区別して“単結晶サファイア”と呼ばれることもある。本論文では、無色透明の酸化アルミニウムのコランダム結晶をサファイアと表記する。

#### 4.1.1 耐アルカリ金属光学材料としてのサファイア

アルカリ金属蒸気セルに使われている材質としては、石英ガラス ( $\text{SiO}_2$ ) やホウケイ酸ガラスがよく使われる。これらケイ酸塩ガラスは室温程度の温度ではアルカリ金属とあまり反応しない。しかし、高密度なアルカリ金属原子が必要な実験などで蒸気セルを温めた場合に、 $200^\circ\text{C}$  程度でケイ酸塩ガラスがアルカリ金属と反応して変色したり脆化したりすることが知られている [66–68]。図 4.1 はルビジウムを封入し



図 4.1 変色したホウ珪酸ガラス。

たホウ珪酸ガラスを  $400^{\circ}\text{C}$  で数時間温めたときの変色の様子である。濃い茶褐色に変色している様子が見てとれる。高温でのガラスの変色は例えばナトリウムランプで工業的にも問題となることから研究の対象になり、高温ではアルカリ金属原子はガラス中に拡散してき、変色はアルカリ金属蒸気に曝されている表面の数マイクロメートルほどの層で起こっていることが明らかになった。しかし、どのようなメカニズムで変色するのは長い間議論されてきたものの、明確な結論は出ていない [66,67]。

アルカリ金属との反応はガラスの材質や組成によって大きく異なるのも特徴の一つで、アルミノケイ酸塩ガラスはケイ酸塩ガラスに比べて高温でもアルカリ金属に耐えられる。しかし、それでも長期間の使用は  $350^{\circ}\text{C}$  程度が限界である [68]。

より高温での実験のため、すなわちより高密度なアルカリ金属を使った実験のための材料の候補の一つとして、サファイアや多結晶アルミナが注目されている。サファイアはナトリウム (Na) では  $1500^{\circ}\text{C}$  まで [69]、セシウム (Cs) では  $1000^{\circ}\text{C}$  まで [70] の高温で使われた実績がある。特に、サファイアは可視光から赤外線の領域までの広い範囲で透過率が高く、種々の高温実験で用いられている [42,69,71–76]。サファイアは加工が難しいため蒸気セルに用いる際には様々な工夫が必要で、高温実験で多く報告されているのは真空・高温・アルカリ金属に耐える特殊な接着剤で接合したり [42,69,70,72,73] 固定具でサファイア結晶を圧着したり [71,74] して作ったサファイアセルである。

高温での実験ではないものの、ユニークな特徴を持つサファイアセルを使った実験もある [77]。この実験で使われたサファイアセルは、サファイア単結晶同士を拡散接合によって接合して作られている。拡散接合とは、よく研磨した表面同士を合わせて融点以下の高温にし、原子の拡散によって接合する方法である。拡散接合ではサファイア同士を直接接合できるため接着剤や固定具が必要なく、高温にした際に熱膨張係数の違いに起因する歪みを小さくできる。また、汚染や背景ガスの増加の原因になりうる接着剤を使わずに済む。しかし、拡散接合サファイアセルの高温での特性は未だ報告されていない。

#### 4.1.2 アルカリ金属原子とサファイア表面との相互作用

前述したように、アルカリ金属原子とサファイア表面とは興味深い相互作用を示す。

例えば、アルカリ金属蒸気を封入した場合にガラスセルに比べてサファイアセルでは電気伝導率が5桁も低かったという報告がある [78]. ガラスもサファイアも通常は絶縁体であり、電気伝導率は共に低い。しかしこの実験では、アルカリ金属を封入した場合にはガラスの電気伝導率は高くなり、測定結果からはガラス表面に吸着しているアルカリ金属原子層の面積に比例するように電気伝導率が高くなることが示唆された。アルカリ金属原子はガラス壁に吸着しやすいため表面にアルカリ金属の準単分子層が形成され、電気伝導率が低くなったと考えられる。一方でサファイアセルでは電気伝導率はガラスセルの場合ほどは高くならなかった。これは、サファイア表面への吸着エネルギーがガラス表面に比べて極めて小さい可能性があることを示している。

吸着エネルギーは表面との相互作用を特徴付ける重要なパラメータの一つで、吸着エネルギーが小さければ表面に吸着している時間も短く、素朴に考えれば、サファイア表面ではスピン緩和レートが比較的小さい可能性に望みが持てる。

また、サファイアは誘電率の周波数応答において Cs 原子の遷移周波数と近い周波数でピークを持ち、サファイア表面と Cs 原子とで仮想光子のやり取りを介した特異な相互作用が起こることが知られている [41–43].

## 4.2 拡散接合サファイアセル

### 4.2.1 サファイアセルの作製

本実験で使用したサファイアセルは6枚のサファイア板を拡散接合して貼り合わせた立方体型のセルである。拡散接合前にセル内面はアルコールおよびアルカリ溶液で洗浄した。洗浄後、サファイア板を張り合わせて待機中で1400°Cで熱した。セルを排気したりアルカリ金属を封入したりするためには通常のガラス細工技術で加工可能な枝管が必要で、ホウケイ酸ガラス製の枝管が拡散接合されている。本実験ではセルに直接ホウケイ酸ガラスの枝管が接続されているが、セルに直接つなぐ枝管はサファイア製にしてガラスの枝管を継ぐこともできる。サファイアセルのイメージ図を図4.2に示す。サファイアセルの大きさは内側で14 mm × 14 mm × 14 mm、枝管は内径2.4 mmである。

上記のようにして作製したサファイアセルをガラスの枝管を通して真空装置に接続して排気した。サファイアセルは400°Cで1日バークして、表面に吸着した水分や不純物を取り除いた。その後、自然存在比のルビジウム金属を枝管に付着させ、真空中に排気したまま枝管を封じ切った。封入時の圧力は $3 \times 10^{-5}$  Pa以下であった。

### 4.2.2 サファイアセルのスピン緩和時間測定

サファイアセルでのスピン緩和時間が測定された報告はまだない。そこで、第4.1.2で簡単に触れたようにサファイア表面でのスピン緩和レートが小さいことを期待して、スピン緩和時間の測定を行なった。実験のセットアップを図4.3に示す。直径が約10 mmの円偏光のポンプ光をセルに斜めに照射してスピン偏極し、直径がおよそ0.5 mmで円偏光のプローブ光の透過光強度を測定する。プローブ光もポンプ光も周波数は $^{85}\text{Rb } D_2$  線の  $F = 3 \rightarrow F' = 4$  遷移周波数に合わせた。セルにはレーザーの進行方向の向きに0.4 Gの磁場を印加した。ポンプ光を十分長い間照射してセル内原子の偏極状態が定常状態に落ち着いた

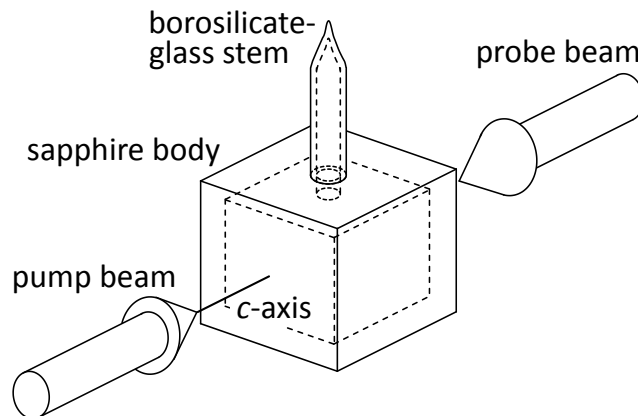


図 4.2 拡散接合サファイアセル. 結晶軸を合わせて6枚のサファイア結晶板を拡散接合した立方体のセル. 内側の1辺が14 mm. セルにはホウケイ酸ガラスの枝管が接合されていて, 真空系などに一般的なガラス細工で接続できる. 実験ではレーザー光はサファイア結晶の  $c$  軸に合わせて入射した.

後に, ポンプ光を遮断する. ポンプ光パワーが1 mW, プローブ光パワーが10  $\mu$ W のときのポンプ光遮断後のプローブ光透過光強度の減衰を図 4.4 に示す. ポンプ光とプローブ光の円偏光の向きは互いに逆向きとした.

図 4.4 の結果は詳細には解析しないが, ポンプ光を遮断してから50  $\mu$ s 程度で緩和していることがわかる. サファイアセルの内側の1辺は14 mm だから, 壁との衝突レート  $\gamma_{wall}$  はおよそ

$$\gamma_{wall} = \frac{3}{2} \times \frac{300 \text{ m/s}}{14 \text{ mm}} = 0.32 \times 10^5 / \text{s},$$

である. よって, 壁と衝突するまでの平均の時間は  $1/\gamma_{wall} \approx 30 \mu\text{s}$  と見積もれる. この時間を緩和時間測定の結果と比べると, サファイア表面でのスピン緩和レートが著しく小さくはないとわかる.

### 4.3 拡散接合サファイアセルでの速度変化衝突レート測定

サファイアセル内の Rb 原子の背景ガスとの速度変化衝突レートを測定した. サファイアは複屈折性の物質で, 結晶構造の  $c$  軸に平行な方向と垂直な方向とで屈折率が異なる. そのため, 本実験ではレーザー光を  $c$  軸に合わせて入射した.

サファイアセルを高温でバークした際の背景ガスの変化を, 図 4.5 に示すような流れでモニターした.

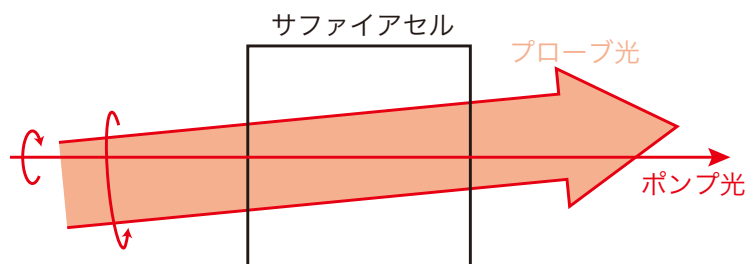


図 4.3 サファイアセルのスピン緩和時間測定.

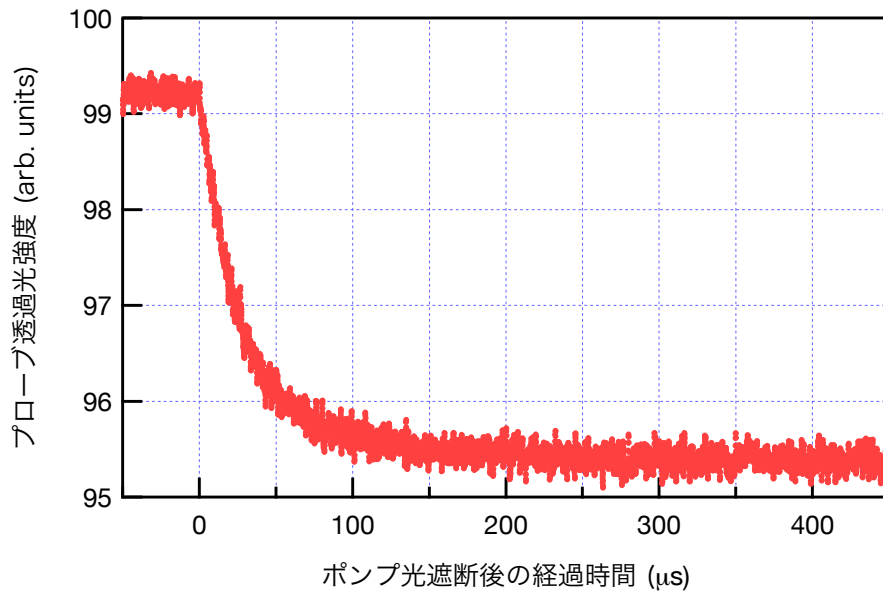


図 4.4 サファイアセルのスピンの緩和時間測定の結果.

まずは、Rb を封入してから室温で保管していたサファイアセルで測定を行い、背景ガスが検出感度以下の圧力であることを確かめた。次に、サファイアセルを温度  $T_A$  で 6 時間温め、その後室温で同様の測定を行って速度変化衝突レートを求めた。このベーキングと測定のセットは複数回繰り返し、その度に  $T_A$  を  $50^\circ\text{C}$  から  $50^\circ\text{C}$  刻みで  $400^\circ\text{C}$  まで高くした。  $T_A = 400^\circ\text{C}$  でベークすると Rb による光の吸収が観測できなかった。これは、封入した Rb が全てホウケイ酸ガラスでできた枝管と反応してしまったと考えられる。実際、ベーク温度を高くしていくごとに枝管は茶色く変色していき、  $400^\circ\text{C}$  ベーク後には茶褐色になっている (図 4.6)。

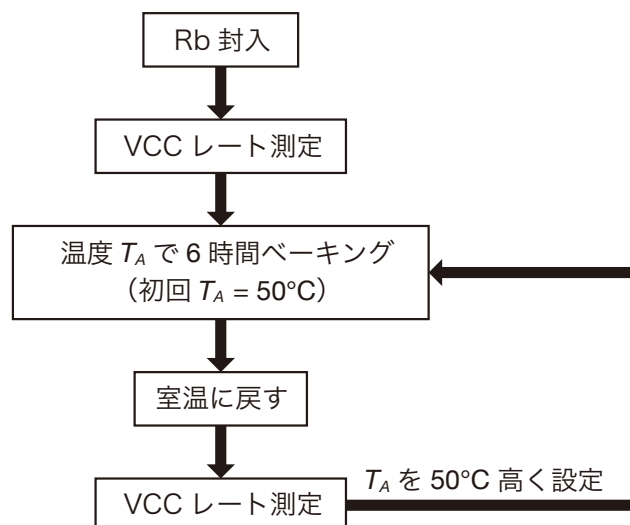


図 4.5 高温ベーク実験の流れ.





図 4.6 400°C バーク後のサファイアセル。枝管部が茶褐色に変色している。一方で、サファイア結晶部は透明なままである。

#### 4.4 高温バークによる速度変化衝突レートの変化

サファイアセルをバークする前の VCC レート測定の結果を図 4.7 に黒点で示す。破線は無視した場合（VCC レートがゼロとした場合）の信号のシミュレーション結果を表していて、バーク前の測定結果とよく一致する。したがって、バーク前ではサファイアセル内 Rb 原子の背景ガスとの速度変化衝突は本測定の検出限界以下である。

バーク温度を高温にしていくと、VCC レートが高くなった。各バーク温度で測定された VCC レートを図 4.8 に示す。また、200°C バーク後の VCC レート測定の結果を図 4.7 に赤点で示している。バーク前の測定データよりも信号が早く減衰している。第 3 章と同様に強い衝突を仮定した理論曲線をフィッティングすると、VCC レートが  $5.5 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$  と求められた。この VCC レートは 1 Pa オーダーの圧力に対応する。ところが、250°C でのバーク後には、VCC レートは低くなった。その後のより高温のバークで VCC レートは微増しているものの、200°C バーク後ほどは高くならなかった。250°C バークで VCC レートが低くなっていることから、200°C バークでの VCC レートの増加が、サファイアセルの真空が破れてリークしたガスによるものではないことがわかる。

200°C バークによる VCC レートの増加、すなわち背景ガスの増加がリークでないとする、ルビジウム原子がサファイア結晶あるいはホウケイ酸ガラスと反応してガスを生成したか、セル壁表面に吸着していた原子・分子と反応してガスを生成したと考えられる。

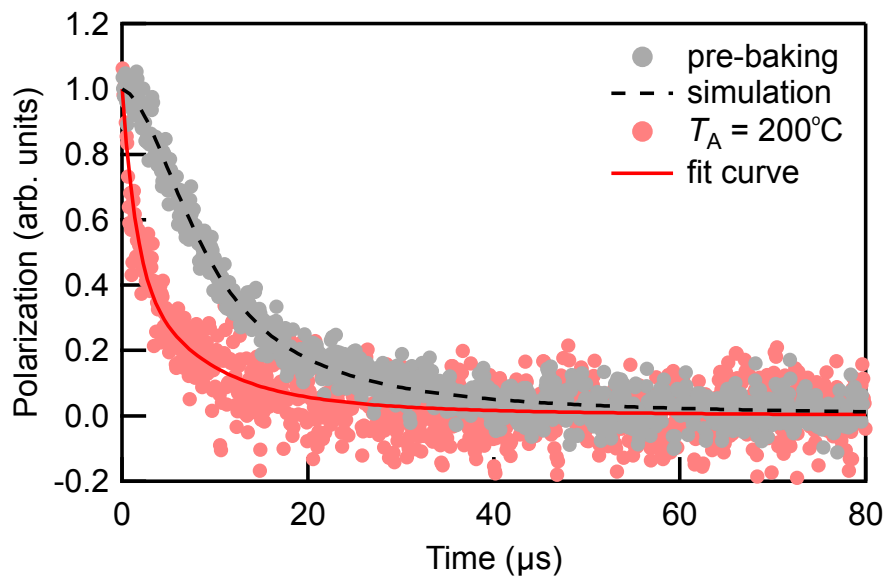


図 4.7 ベーク前と 200°C ベーク後の VCC レート測定の結果.

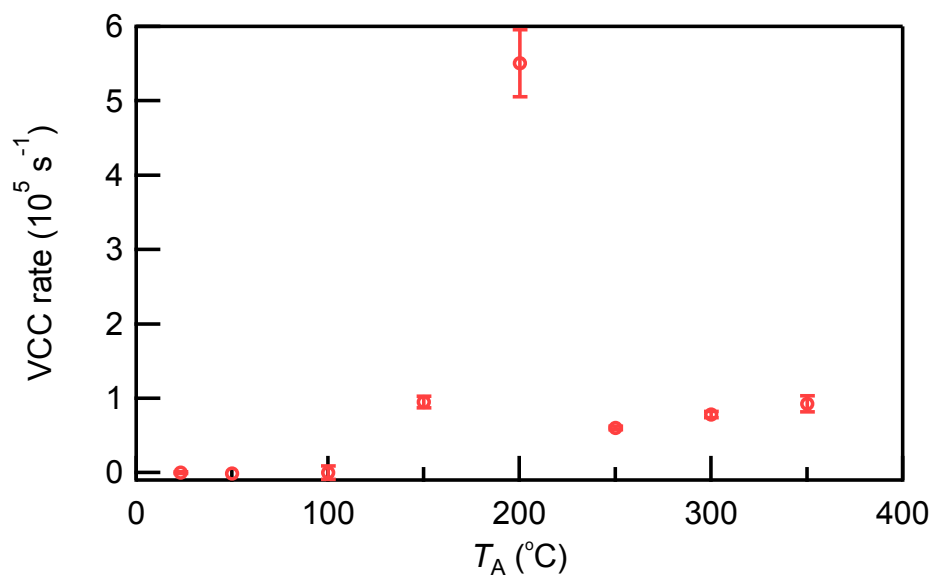


図 4.8 ベーク後の速度変化衝突レート.

サファイアセルの作製過程で、セル内面はアルコールおよびアルカリ溶液で洗浄され、拡散接合時に大気中で 1400°C に熱され、Rb 封入時に真空排気しながら 400°C でバークされたため、有機物や大気中に存在する水、窒素、二酸化炭素などの分子がセル壁に 1 Pa オーダーの圧力のガスを生成するほど吸着しているとは考えにくい。他方で、ヒドロキシ基 (-OH) がアルミニウム原子に、あるいは水素原子 (H) が酸素原子に結合して表面に吸着している可能性は十分ある。表面に吸着したヒドロキシ基や水素原子とルビジウム原子との化学反応で生成されうるガスとしては、水素 (H<sub>2</sub>)、酸素 (O<sub>2</sub>)、水蒸気 (H<sub>2</sub>O) が考えられる。酸素と水蒸気はアルカリ金属原子と激しく反応するため、本実験で生成されたガスの候補からは除外でき、残る候補は水素ガスである。水素分子はアルカリ金属原子との反応性は比較的低いが、高温では反応してアルカリ塩 (例えばルビジウムとの反応では RbH) を生成する [79]。高温で反応して塩になれば水素ガス圧力は下がるから、本実験で観測された背景ガスの高温バークでの振る舞いを説明できる。

## 4.5 まとめ

本実験では、サファイアセルを長時間高温で温めたときの背景ガスの変化を調べた。使用したサファイアセルは 6 枚のサファイア結晶板を拡散接合で張り合わせたセルで、セルにはホウケイ酸ガラスの枝管が接続されている。サファイアセルにはルビジウム蒸気を封入し、室温ではルビジウム原子と背景ガスとの衝突は無視できることを確かめた。その後、サファイアセルを高温で 6 時間温め、室温に戻した後に背景ガスとの衝突レートを測定することを繰り返した。サファイアセルを温める温度は 50°C から 50°C ずつ 400°C まで高くした。200°C で温めた後には背景ガスが顕著に増加していた。また、その後 250°C で温めると背景ガスは減少していた。一旦増えた背景ガスが減少していたことから、200°C で温めた際の背景ガスの増加はサファイアセルのリークが原因ではないことが言える。ルビジウム原子が何らかの化学反応を起こし背景ガスを生成したと考えると、背景ガスは水素ガスが主成分である可能性が高い。水素ガスは高温でルビジウム原子と反応して固体のルビジウム塩になる反応があり得、250°C で背景ガスが減少したことも説明できる。続いて 300°C、350°C で温めても背景ガスの顕著な増加は認められなかった。400°C で温めた後にはルビジウム原子による光の吸収が観測できず、封入したルビジウム原子が何らかの化学反応によって全て消費されてしまったと考えた。高温で温めるとホウケイ酸ガラスの枝管は茶褐色を呈するようになったが、サファイア部は変色せず透明なままだった。本実験では 400°C のバークでルビジウムが枯渇してしまったが、より多量のルビジウムを封入したり、高温にする際にガラス製の枝管部を若干低温に保ったりすることで、より高温での使用も可能と考えられる。



## 第 5 章

# まとめ

コーティングセルを応用した高精度な測定 [3,6,7,27] や、小型デバイスの開発 [28,29]、短寿命核種を用いた実験 [31–34] において、コーティングセル内でアルカリ金属原子がどのように運動しているかは測定精度に関わる重要な情報である。

セル内原子の運動に影響し得る要因として、コーティング表面による散乱と背景ガスによる散乱が考えられる。しかし、従来の研究においてはコーティング表面での散乱にはあまり注意が払われてこなかった。多くの場合はコーティング表面で原子は拡散反射されると考えられてきたが [27,36,37]、実験的な裏付けが報告されたことはない。また、背景ガスとの衝突は無視され、原子はセル内を自由に飛び回る描像が受け入れられてきた。しかし一方で、アルカリ原子との反応によって生じたと考えられるガスの存在が報告されている [25,38,39]

そこで、本研究では、コーティングセル内のアルカリ金属原子の運動の様子を調べた。具体的には、コーティング表面での散乱と背景ガスによる散乱を実験的に測定した。

コーティング表面によるアルカリ金属原子の散乱は、パラフィン膜によるルビジウム原子ビーム散乱実験を行なって調べた。散乱実験では 200 °C に温めたオープンから漏れ出す Rb 原子ビームをパラフィン膜に入射し、散乱してきた原子の角度分布と速度分布を測定した。角度分布は余弦則を示し、速度分布は Maxwell 分布にしたがった。その際の Maxwell 分布の広がりから散乱原子の温度を求めると、入射した原子の温度よりも 100 °C 以上低く、パラフィン膜の温度（室温）と近かった。これらの結果から、パラフィン膜による散乱の過程において、Rb 原子の運動状態はパラフィン膜と熱平衡状態に至ると結論づけた。並進運動は熱平衡状態になる一方で、散乱原子のハイパーファイン偏極はパラフィン膜との散乱においても保たれることも確かめられた。

コーティングセル内背景ガスの影響を調べるために、パラフィンをコーティングしたルビジウム蒸気セルを多数作製し、背景ガスとの衝突レートを測定した。従来の分光的手法ではコーティング表面での衝突と背景ガスとの衝突を区別できなかったため、本研究で新たな手法を考案した。その結果、背景ガスとの衝突レートは  $1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$  程度であることが明らかになった。測定された衝突レートは 1 mm の平均自由行程に対応し、この平均自由行程はセルの典型的な大きさよりも短い。また、圧力では数 Pa のオーダーに対応する。また、コーティングセル作製でのライプニング工程によって、背景ガス圧力が高くなることがわかった。すなわち、ライプニングによってコーティングとアルカリ金属原子が反応していると考えられる。ライプニング前後ではパラフィンのスピン緩和防止性能が向上していることも実験的に確かめら

れた。

本研究によって、従来のコーティングセル内におけるアルカリ金属原子の振る舞いに修正と実験的裏付けを与えることができた。すなわち、従来は背景ガスとの衝突は無視されてきたが、原子の平均自由行程はセルの大きさよりも短く、衝突は無視できないことを明らかにした。また、コーティング表面との一度の散乱で、スピン状態は保つ一方で、原子の並進運動状態が表面との熱平衡状態に至ることが実験的に確かめられた。

本研究で行なった原子ビームのコーティング表面での散乱実験は、これまでコーティングセルで行われてきた原子-コーティング表面相互作用の研究に別の視点からの実験が行えると考えられる。原子ビーム散乱実験によって直接的に表面での素過程を調べることができる。例えば、表面への吸着時間を直接的に測ることができる。また、コーティング表面温度や入射原子ビームの温度を変えることでより詳細に相互作用に迫ることができる。

本研究で考案した衝突レート測定方法を異種のアルカリ蒸気セルに応用した実験も行った。サファイア結晶でできたアルカリ蒸気セルは、ガラスでできたセルに比べて遥かに高温でもアルカリ金属蒸気に耐えることができ、高い蒸気密度が必要な実験へ応用されている [42, 69, 71–76]。また、サファイア表面とアルカリ金属原子との特徴的な相互作用が注目されている [41–43, 78]。多くのサファイアセルは固定具や接着剤でサファイア結晶を張り合わせて作られているが、この実験ではサファイア結晶同士を拡散接合で張り合わせたセルを作製し、ルビジウム原子を封入した上で高温にした場合の背景ガスの変化を測定した。その結果、高温にした際に背景ガスが増加していた。また、更なる高温で温めると、背景ガスが減ることも明らかとなった。これらの高温特性から、高温にした際のサファイアセル内でのルビジウム原子の反応を推察し、水素ガスが発生していると考えた。また、高温にしてもサファイアセルは真空封止されており、光学特性も良好なままであった。拡散接合サファイアセルが高温実験に応用できることを確認できた。

## 参考文献

- [1] W. Happer, “*Optical Pumping*,” *Rev. Mod. Phys.* **44**, 169 (1972).
- [2] L. Balling, “*OPTICAL PUMPING*,” in *Advances in Quantum Electronics*, edited by D. Goodwin, pp. 1 – 167, Academic Press, 1975.
- [3] D. Budker and M. Romalis, “*Optical magnetometry*,” *Nat. Phys.* **3**, 227 (2007).
- [4] C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan, “*Vapour Pressure Equations for the Metallic Elements: 298–2500K*,” *Canadian Metallurgical Quarterly* **23**, 309 (1984).
- [5] H. G. Robinson, E. S. Ensberg, and H. G. Dehmelt, “*Preservation of spin state in free atom-inert surface collisions*,” *Bull. Am. Phys. Soc* **3**, 9 (1958).
- [6] D. Budker, V. Yashchuk, and M. Zolotarev, “*Nonlinear Magneto-optic Effects with Ultranarrow Widths*,” *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5788 (1998).
- [7] D. Budker, D. F. Kimball, S. M. Rochester, V. V. Yashchuk, and M. Zolotarev, “*Sensitive magnetometry based on nonlinear magneto-optical rotation*,” *Phys. Rev. A* **62**, 043403 (2000).
- [8] H. G. Robinson and C. E. Johnson, “*Narrow  $^{87}\text{Rb}$  hyperfine-structure resonances in an evacuated wall-coated cell*,” *Appl. Phys. Lett.* **40**, 771 (1982).
- [9] T. Bandi, C. Affolderbach, and G. Mileti, “*Laser-pumped paraffin-coated cell rubidium frequency standard*,” *J. Appl. Phys.* **111**, 124906 (2012).
- [10] D. Budker, D. F. Kimball, S. M. Rochester, and V. V. Yashchuk, “*Nonlinear Magneto-optics and Reduced Group Velocity of Light in Atomic Vapor with Slow Ground State Relaxation*,” *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1767 (1999).
- [11] M. Klein, I. Novikova, D. F. Phillips, and R. L. Walsworth, “*Slow light in paraffin-coated Rb vapour cells*,” *J. Mod. Optic.* **53**, 2583 (2006).
- [12] A. Kuzmich, L. Mandel, and N. P. Bigelow, “*Generation of Spin Squeezing via Continuous Quantum Nondemolition Measurement*,” *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1594 (2000).
- [13] B. Julsgaard, J. Sherson, J. I. Cirac, J. Fiurasek, and E. S. Polzik, “*Experimental demonstration of quantum memory for light*,” *Nature* **432**, 482 (2004).
- [14] P. Peng, W. Cao, C. Shen, W. Qu, J. Wen, L. Jiang, and Y. Xiao, “*Anti-parity-time symmetry with flying atoms*,” *Nature Physics* **12**, 1139 (2016).
- [15] G. W. Biedermann, H. J. McGuinness, A. V. Rakholia, Y.-Y. Jau, D. R. Wheeler, J. D. Sterk, and G. R. Burns, “*Atom Interferometry in a Warm Vapor*,” *Phys. Rev. Lett.* **118**, 163601 (2017).

- [16] H. M. Goldenberg, D. Kleppner, and N. F. Ramsey, “Atomic Beam Resonance Experiments with Stored Beams,” *Phys. Rev.* **123**, 530 (1961).
- [17] R. G. Brewer, “Study of Atom-Wall Collisions by Optical Pumping,” *The Journal of Chemical Physics* **38**, 3015 (1963).
- [18] M. A. Bouchiat and J. Brosset, “Relaxation of Optically Pumped Rb Atoms on Paraffin-Coated Walls,” *Phys. Rev.* **147**, 41 (1966).
- [19] V. Liberman and R. J. Knize, “Relaxation of optically pumped Cs in wall-coated cells,” *Phys. Rev. A* **34**, 5115 (1986).
- [20] C. Rahman and H. Robinson, “Rb OO hyperfine transition in evacuated wall-coated cell at melting temperature,” *IEEE journal of quantum electronics* **23**, 452 (1987).
- [21] M. Stephens, R. Rhodes, and C. Wieman, “Study of wall coatings for vapor-cell laser traps,” *J. Appl. Phys.* **76**, 3479 (1994).
- [22] D. Budker, L. Hollberg, D. F. Kimball, J. Kitching, S. Pustelny, and V. V. Yashchuk, “Microwave transitions and nonlinear magneto-optical rotation in anti-relaxation-coated cells,” *Phys. Rev. A* **71**, 012903 (2005).
- [23] E. Ulanski and Z. Wu, “Measurement of dwell times of spin polarized rubidium atoms on octadecyltrichlorosilane- and paraffin-coated surfaces,” *Appl. Phys. Lett.* **98**, (2011).
- [24] K. F. Zhao, M. Schaden, and Z. Wu, “Method for Measuring the Dwell Time of Spin-Polarized Rb Atoms on Coated Pyrex Glass Surfaces Using Light Shift,” *Phys. Rev. Lett.* **103**, 073201 (2009).
- [25] Y. W. Yi, H. G. Robinson, S. Knappe, J. E. MacLennan, C. D. Jones, C. Zhu, N. A. Clark, and J. Kitching, “Method for characterizing self-assembled monolayers as antirelaxation wall coatings for alkali vapor cells,” *J. Appl. Phys.* **104**, 023534 (2008).
- [26] S. N. Atutov, V. Biancalana, P. Bicchi, C. Marinelli, E. Mariotti, M. Meucci, A. Nagel, K. A. Nasyrov, S. Rachini, and L. Moi, “Light-induced diffusion and desorption of alkali metals in a siloxane film: Theory and experiment,” *Phys. Rev. A* **60**, 4693 (1999).
- [27] J. Skalla and G. Wäckerle, “Ramsey-type spectroscopy of alkali spin coherence in sealed glass cells: Measurement of geometric quantum phases,” *Applied Physics B* **64**, 459 (1997).
- [28] R. Straessle, M. Pellaton, C. Affolderbach, Y. Pétremand, D. Briand, G. Miletì, and N. F. de Rooij, “Microfabricated alkali vapor cell with anti-relaxation wall coating,” *Appl. Phys. Lett.* **105**, 043502 (2014).
- [29] M. Giraud-Carrier, T. Decker, J. McClellan, L. Bennett, A. Hawkins, J. Black, S. Almquist, and H. Schmidt, “Temperature and wall coating dependence of alkali vapor transport speed in micron-scale capillaries,” *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films* **35**, 031602 (2017).
- [30] A. Keerthi, A. K. Geim, A. Janardanan, A. P. Rooney, A. Esfandiar, S. Hu, S. A. Dar, I. V. Grigorieva, S. J. Haigh, F. C. Wang, and B. Radha, “Ballistic molecular transport through two-dimensional channels,” *Nature* **558**, 420 (2018).
- [31] J. E. Simsarian, A. Ghosh, G. Gwinner, L. A. Orozco, G. D. Sprouse, and P. A. Voytas, “Magneto-Optic

- Trapping of  $^{210}\text{Fr}$ ,*” *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3522 (1996).
- [32] Z.-T. Lu, K. L. Corwin, K. R. Vogel, C. E. Wieman, T. P. Dinneen, J. Maddi, and H. Gould, “*Efficient Collection of  $^{221}\text{Fr}$  into a Vapor Cell Magneto-optical Trap,*” *Phys. Rev. Lett.* **79**, 994 (1997).
- [33] S. N. Atutov, V. Biancalana, A. Burchianti, R. Calabrese, L. Corradi, A. Dainelli, V. Guidi, B. Mai, C. Marinelli, E. Mariotti, L. Moi, A. Rossi, E. Scansani, G. Stancari, L. Tomassetti, and S. Veronesi, “*The Legnaro Francium Magneto-Optical Trap,*” *Hyperfine Interactions* **146**, 83 (2003).
- [34] Y. Sakemi, K. Harada, T. Hayamizu, M. Itoh, H. Kawamura, S. Liu, H. S. Nataraj, A. Oikawa, M. Saito, T. Sato, H. P. Yoshida, T. Aoki, A. Hatakeyama, T. Murakami, K. Imai, K. Hatanaka, T. Wakasa, Y. Shimizu, and M. Uchida, “*Search for a permanent EDM using laser cooled radioactive atom,*” *Journal of Physics: Conference Series* **302**, 012051 (2011).
- [35] R. P. Frueholz and J. C. Camparo, “*Implications of the trapping-desorption and direct inelastic-scattering channels on Dicke-narrowed line shapes,*” *Phys. Rev. A* **35**, 3768 (1987).
- [36] M. Klein, M. Hohensee, D. F. Phillips, and R. L. Walsworth, “*Electromagnetically induced transparency in paraffin-coated vapor cells,*” *Phys. Rev. A* **83**, 013826 (2011).
- [37] X. Zhi-Xiang, Q. Wei-Zhi, G. Ran, H. Xin-Hua, and X. Yan-Hong, “*Linewidth of electromagnetically induced transparency under motional averaging in a coated vapor cell,*” *Chinese Physics B* **22**, 033202 (2013).
- [38] J. C. Camparo, R. P. Frueholz, and B. Jaduszliwer, “*Alkali reactions with wall coating materials used in atomic resonance cells,*” *J. Appl. Phys.* **62**, 676 (1987).
- [39] S. N. Atutov, R. Calabrese, A. I. Plekhanov, and L. Tomassetti, “*Diffusion and photodesorption of molecular gases in a polymer organic film,*” *Eur. Phys. J. D* **68**, 6 (2014).
- [40] R. E. Stickney, “*Atomic and Molecular Scattering from Solid Surfaces,*” *Advances in Atomic and Molecular Physics* **3**, 143 (1968).
- [41] H. Failache, S. Saltiel, M. Fichet, D. Bloch, and M. Ducloy, “*Resonant van der Waals Repulsion between Excited Cs Atoms and Sapphire Surface,*” *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5467 (1999).
- [42] J. Keaveney, A. Sargsyan, U. Krohn, I. G. Hughes, D. Sarkisyan, and C. S. Adams, “*Cooperative Lamb Shift in an Atomic Vapor Layer of Nanometer Thickness,*” *Phys. Rev. Lett.* **108**, 173601 (2012).
- [43] A. Laliotis, T. P. de Silans, I. Maurin, M. Ducloy, and D. Bloch, “*Casimir-Polder interactions in the presence of thermally excited surface modes,*” *Nature Communications* **5**, 4364 EP (2014).
- [44] Y. Yoshikawa, T. Umeki, T. Mukae, Y. Torii, and T. Kuga, “*Frequency stabilization of a laser diode with use of light-induced birefringence in an atomic vapor,*” *Appl. Opt.* **42**, 6645 (2003).
- [45] M. L. Harris, C. S. Adams, S. L. Cornish, I. C. McLeod, E. Tarleton, and I. G. Hughes, “*Polarization spectroscopy in rubidium and cesium,*” *Phys. Rev. A* **73**, 062509 (2006).
- [46] A. M. Hibberd, S. L. Bergman, Y. L. Zhong, and S. L. Bernasek, “*Potassium spin polarization lifetime for a 30-carbon chain siloxane film,*” *J. Chem. Phys.* **137**, (2012).
- [47] K. Tanaka, N. Okui, and T. Sakai, “*Molecular orientation behavior of paraffin thin films made by vapor deposition,*” *Thin Solid Films* **196**, 137 (1991).
- [48] W. McDaniel, J. Mitchell, and E. Rudd, *Atomic Collisions* (Wiley, 1993).



- [49] R. Bernheim, *Optical pumping*, New York (1965).
- [50] N. D. Zamoski, G. D. Hager, W. Rudolph, C. J. Erickson, and D. A. Hostutler, “Pressure broadening and collisional shift of the Rb  $D_2$  absorption line by  $CH_4$ ,  $C_2H_6$ ,  $C_3H_8$ ,  $n-C_4H_{10}$ , and He,” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **112**, 59 (2011).
- [51] P. Cahuzac, E. Marie, O. Robaux, R. Vetter, and P. R. Berman, “The effect of velocity-changing collisions upon saturated-absorption profiles: the laser line of xenon at  $\lambda = 3.51 \mu\text{m}$ ,” *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **11**, 645 (1978).
- [52] C. Brechignac, R. Vetter, and P. R. Berman, “Study of velocity-changing collisions in excited Kr using saturation spectroscopy,” *Phys. Rev. A* **17**, 1609 (1978).
- [53] M. Pinard, C. Aminoff, and F. Laloë, “Velocity-selective optical pumping and Doppler-free spectroscopy,” *Phys. Rev. A* **19**, 2366 (1979).
- [54] C. G. Aminoff, J. Javanainen, and M. Kaivola, “Collision effects in velocity-selective optical pumping of sodium,” *Phys. Rev. A* **28**, 722 (1983).
- [55] T. Bhamre, R. Marsland, I. K. Kominis, B. H. McGuyer, and W. Happer, “Collision kernels from velocity-selective optical pumping with magnetic depolarization,” *Phys. Rev. A* **87**, 043412 (2013).
- [56] S. Rautian, “The effect of collisions on spectral characteristics of gas lasers,” *Sov. Phys. JETP* **24**, 788 (1967).
- [57] S. W. Morgan and W. Happer, “Optically pumped atoms with velocity- and spin-changing collisions at low gas pressures,” *Phys. Rev. A* **81**, 042703 (2010).
- [58] J. Keilson and J. E. Storer, “On Brownian motion, Boltzmann’s equation, and the Fokker-Planck equation,” *Quarterly of Applied Mathematics* **10**, 243 (1952).
- [59] B. H. McGuyer, R. Marsland, B. A. Olsen, and W. Happer, “Cusp Kernels for Velocity-Changing Collisions,” *Phys. Rev. Lett.* **108**, 183202 (2012).
- [60] R. Marsland, B. H. McGuyer, B. A. Olsen, and W. Happer, “Spin-velocity correlations of optically pumped atoms,” *Phys. Rev. A* **86**, 023404 (2012).
- [61] M. T. Graf, D. F. Kimball, S. M. Rochester, K. Kerner, C. Wong, D. Budker, E. B. Alexandrov, M. V. Balabas, and V. V. Yashchuk, “Relaxation of atomic polarization in paraffin-coated cesium vapor cells,” *Phys. Rev. A* **72**, 023401 (2005).
- [62] D. Suter, *The physics of laser-atom interactions* (Cambridge University Press, 1997).
- [63] W. Demtröder, *Laser spectroscopy*, 4th ed. (Springer, 2008).
- [64] S. J. Seltzer, M.-A. Bouchiat, and M. V. Balabas, “Surface coatings for atomic magnetometry,” in *Optical Magnetometry*, edited by D. Budker and D. F. J. Kimball, chap. 11, pp. 205–224, Cambridge University Press, 2013.
- [65] E. B. Alexandrov, M. V. Balabas, D. Budker, D. English, D. F. Kimball, C.-H. Li, and V. V. Yashchuk, “Light-induced desorption of alkali-metal atoms from paraffin coating,” *Phys. Rev. A* **66**, 042903 (2002).
- [66] A. Stryjak and P. W. McMillan, “Colour centre formation due to alkali metal vapour exposure and x-ray irradiation of spinel transparent glass ceramics,” *Glass Technology* **20**, 53 (1979).
- [67] J. Lau and P. W. McMillan, “Interaction of sodium with simple glasses,” *Journal of Materials Science*

- [19](#), 881 (1984).
- [68] E. D. Babcock, *Spin-Exchange Optical Pumping with Alkali-Metal Vapors*, PhD thesis, Univ. of Wisconsin-Madison, 2005.
- [69] J. Schlejen, J. Post, J. Korving, and J. P. Woerdman, “Cell for absorption and fluorescence spectroscopy of high - pressure and high - temperature sodium vapor,” [Review of Scientific Instruments](#) **58**, 768 (1987).
- [70] D. Sarkisyan, A. S. Sarkisyan, J. Guéna, M. Lintz, and M.-A. Bouchiat, “Alkali-vapor cell with metal coated windows for efficient application of an electric field,” [Rev. Sci. Instrum.](#) **76**, 053108 (2005).
- [71] A. G. Zajonc, “Novel high - temperature, Na vapor cell,” [Review of Scientific Instruments](#) **51**, 1682 (1980).
- [72] J. A. Neuman, P. Wang, and A. Gallagher, “Robust high-temperature sapphire cell for metal vapors,” [Review of Scientific Instruments](#) **66**, 3021 (1995).
- [73] A. Laliotis, I. Maurin, M. Fichet, D. Bloch, M. Ducloy, N. Balasanyan, A. Sarkisyan, and D. Sarkisyan, “Selective reflection spectroscopy at the interface between a calcium fluoride window and Cs vapour,” [Appl. Phys. B](#) **90**, 415 (2008).
- [74] V. O. Lorenz, X. Dai, H. Green, T. R. Asnicar, and S. T. Cundiff, “High-density, high-temperature alkali vapor cell,” [Review of Scientific Instruments](#) **79**, 123104 (2008).
- [75] S. Shmavonyan, A. Khanbekyan, A. Gogyan, M. Movsisyan, and A. Papoyan, “Selective reflection of light from Rb<sub>2</sub> molecular vapor,” [J. Mol. Spect.](#) **313**, 14 (2015).
- [76] G. Pichler, Y. Makdisi, J. Kokaj, N. Thomas, J. Mathew, and R. Beuc, “Cs<sub>2</sub> ‘diffuse bands’ emission from superheated cesium vapor,” [Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics](#) **49**, 145101 (2016).
- [77] Y. Masuda, T. Ino, V. R. Skoy, and G. L. Jones, “<sup>3</sup>He polarization via optical pumping in a birefringent cell,” [Applied Physics Letters](#) **87**, 053506 (2005).
- [78] M. Bouchiat, J. Guéna, P. Jacquier, M. Lintz, and A. Papoyan, “Electrical conductivity of glass and sapphire cells exposed to dry cesium vapor,” [Applied Physics B](#) **68**, 1109 (1999).
- [79] K. Ishikawa, B. Patton, Y. Y. Jau, and W. Happer, “Spin Transfer from an Optically Pumped Alkali Vapor to a Solid,” [Phys. Rev. Lett.](#) **98**, 183004 (2007).

# 謝辞

高校3年の夏でした。教室でよく話す友人がオレンジ色の分厚い本を読んでいたのを憶えています。量子論や相対論、素粒子論などを一般向けに解説しているリサ・ランドール教授の著書でした。その頃科学雑誌のニュートンを購読していた科学好きの十代男子であった私は、「量子力学」や「相対性理論」、「素粒子」と言った単語が大好きで、何にも理解していないのにしたり顔で「へえ、面白いの読んでるね」などと言ってその本を借りました。当時の私には内容が難しく、結局最後までは読み切っていなかったと記憶していますし、紹介されていた物理を理解することはできませんでした。ただ、物理の世界の見方に魅力を感じ、勉強したいと思ったきっかけはこの本でした。大学で物理を学ぶことにしたきっかけはこんなもので、そういう意味では、本を貸してくれた友人の田淵くんにはまず感謝すべきなのかもしれません。ありがとう。

それくらい軽い動機で大学での学部を選んだものですから、大学に進学した当初は、自分が大学院の博士課程にも進学して10年間も学生を続けるとは夢にも思っていませんでした。学部4年次からは、第一志望であった畠山温教授の研究室に所属することができ、それから7年もの間大変お世話になりました。年度始めのガイダンスに遅刻してしまい、戦々恐々としながら部屋に入った時のことを今でも鮮明に憶えています。

ここでは、最大限の敬意を込めて、「畠山教授」や「畠山先生」ではなくて「畠山さん」と呼ばせて下さい。畠山さんに教えて頂いたことは極めて多岐にわたるため全てを思い出すことはできませんが、右も左もわからなかった頃から実験技術や勉強の仕方、物理的なものの考え方などを丁寧に教えて頂きました。ご指導ご鞭撻、誠にありがとうございます。深く深く感謝しております。また、畠山さんの普段の物理に対する取り組みなどを見て、物理学者というものの印象ができました。学会や研究会などで他の物理学者の方と知り合いお話する機会ができてからも、物理学者というもののモデルは畠山さんが軸にあると感じています<sup>1</sup>。

共同研究者である有機材料化学科の白井博明教授にも大変お世話になりました。感謝申し上げます。また、白井研究室の大熊さんと松坂さんには基板へのパラフィン蒸着をして頂きました。時には無理をお願いしたこともあります。快く引き受けて下さり、実験に欠かせない試料を作製して頂きました。ありがとうございます。

サファイアセルに関する研究は、兵庫県立大学の石川潔准教授のご尽力によって行うことができました。御礼申し上げます。石川先生の鋭いコメントやアドバイスにはとても感服致しました。

畠山研究室では、多くの先輩方にお世話になりました。研究を始めた頃の私が追っていたのは、間違いなく先輩方の背中だと思えます。感謝申し上げます。

研究室の同期の方々も、研究のことについて話し合ったり、くだらないことを喋ったり、たまに飲み会をしたりと良い交流ができました。実験がうまくいかなかったり勉強や書き物が捗らなかったりすると、よくちょっかいを出して作業の邪魔をしていたのですが、邪険にせずかまってくれたお陰で良い気分転換になっていました<sup>2</sup>。ありがとう。これからも仲良くして下さい。

---

<sup>1</sup> 私にとって物理学者は変な人という印象があるのも、畠山さんを見てきたからだと思えます。

<sup>2</sup> 榎田くんはもう少し私に優しく接してくれても良かったと思えます。たぶん。



修士課程、博士課程と進学し後輩というものができたものの、若輩者の我が身のことですから、先輩として望ましくはなかったと思います。その一方で、後輩の方々と接する中で学べたことは数多く、とても感謝しております。お返しに先輩として何かしら与えられたことを願うばかりです。

博士課程のはじめには、スイスにあるフリブール大学の Antoine Weis 教授の研究室に 3 ヶ月程留学することもできました。研究に対する姿勢は日本と異なる部分も多く、大いに刺激を受けました。Weis 教授の温かく愉快的な人柄のおかげで、豊かな留学となりました。ありがとうございます。また、滞在中と一緒に実験をした Vladimir Dolgovskiy 氏にも大変感謝しております。Weis グループのメンバーにはどなたにも親切に迎えて頂きました。みなさまありがとうございます。特に、ルームメイト(?)であった Zoran Grujić 氏には、研究室においても日常生活においてもお世話になりました。ありがとうございます。また、この留学は官民協働海外留学支援制度のトビタテ！留学 JAPAN 日本代表プログラムにご支援頂きました。感謝致します。

日本学生支援機構には奨学金を貸与して頂き、充実した学生生活を送ることができました。感謝申し上げます。

博士課程 3 年次からは、日本学術振興会に手厚く支援して頂きました。日本学術振興会のご支援のおかげで自由な研究を行うことが可能となりました。誠に感謝しております。

これまで研究を続けてこれたのも、両親の温かい支援があつてこそです。ありがとうございました。父の趣味なんだろうとは思いますが、幼い頃から理系の道に引き込んでくれてありがとう。

なんだか筆が乱れた謝辞となってしまいましたが、末筆ながら、畠山研究室の益々のご発展をお祈り申し上げます。

平成 31 年 3 月 26 日

関口直太

## 本研究の関連論文リスト

- N. Sekiguchi, K. Okuma, H. Usui, and A. Hatakeyama, “Scattering of an alkali-metal atomic beam on anti-spin-relaxation coatings,” *Physical Review A* 98, 042709 (2018).  
(第2章の内容に対応)
- N. Sekiguchi and A. Hatakeyama, “Non-negligible collisions of alkali atoms with background gas in buffer-gas-free cells coated with paraffin,” *Applied Physics B* 122, 81 (2016).  
(第3章の内容に対応)
- N. Sekiguchi, T. Sato, K. Ishikawa, and A. Hatakeyama, “Spectroscopic study of a diffusion-bonded sapphire cell for hot metal vapors,” *Applied Optics* 57, 52 (2018).  
(第4章の内容に対応)

## 参考論文

- V. Dolgovskiy, I. Fescenko, N. Sekiguchi, S. Colombo<sup>1</sup>, V. Lebedev, J. Zhang, and A. Weis, “A magnetic source imaging camera,” *Applied Physics Letters* 109, 023505 (2016).