近年、目覚しい進展を遂げている冷却分子の研究の中で、特に注目を集めているのが冷却原子から冷却分子を作る方法である。特に分子に特徴的な大きな電気双極子モーメントを得るために、振動・回転基底状態の冷却分子を作成する競争が世界的に繰り広げられている。冷却原子から基底状態の分子を作成する際に問題になるのが、良い中間状態の選択である。これまで、縮退近くまで冷却した混合原子気体に対してフェッシュバッハ共鳴を用いて、ゆるく束縛した分子を作成し、さらに誘導ラマン断熱遷移を用いて振動・回転基底状態に到達する手法が実現されている。しかしこの手法は蒸発冷却を用いるため冷却にかかる時間が長く、またフェッシュバッハ共鳴を用いるため使用できる原子種に制限があるという欠点があった。本論文で筆者は、レーザー冷却された2種のアルカリ原子(カリウム41とルビジウム87)から光会合によりゆるく束縛した分子を作り、次に誘導ラマン断熱遷移を用いることで、光のみを用いて選択的に振動・回転基底状態の冷却分子を作成できることを世界で初めて実証した。この方法は光の形で全てのエネルギーを取り出すため高速であり、また光会合を用いるためレーザー冷却可能な全ての原子種に適用可能という特色をもつ。

以下に本論文の構成を述べる。

第一章では序論として冷却分子を実現することのインパクトを述べ、次に直接冷却と間接冷却を比較し、長所と短所を論じている。また、この論文で重要な位置を占める光会合についても簡単にその特長を紹介している。

第2章では特に光会合した分子のイオン化信号を得るための実験について紹介している。 実験のための設備は真空槽、磁場コイル、原子のレーザー冷却用のレーザーと光学系、光 会合用のレーザー及び周波数ロックのシステム、イオン化のためのレーザーとイオン化信 号の検出装置、PC による実験の制御系、カメラによる冷却原子のイメージングシステムか らなる。それぞれの設備について原理、概略、特長、および実験上の注意が述べられてい る。

第3章では冷却原子の光会合実験について述べられている。まずレーザー冷却から光会合の手順が示され、特に高密度、低温を達成する鍵として Compressed MOT について説明がなされている。次に光会合レーザーを掃引して得られるスペクトルの例が示され、回転構造から対称性を決定する方法が示されている。さらにイオン化に用いるパルスレーザーを掃引して振動準位を決定し、理論値とよく対応することが示されている。

 幅について考察し、幅がラビ周波数に比例することを解析的に導いている。この導出により、各準位の遷移強度の定量的評価が可能になった。実験で得られたスペクトルを用いてab initio ポテンシャルに Direct potential fit analysis を施し、ポテンシャルの改良をしている。改良後のポテンシャルを用いて計算された遷移強度が実験で得られた遷移強度と比例することから、この改良が必要にして十分であることが確認された。このポテンシャルを元に、ラマン遷移で用いる中間準位を $(3)^1\Sigma$, \mathbf{v} =41, \mathbf{J} =1 と決定している。

4章の後半では(2)3 Σ 状態に関しても Depletion spectroscopy を元に解析を行っている。 スピン 3 重項の場合は回転による分裂のほかに、核スピンの影響で多くのラインが現れ、指数付けが簡単ではない。本論文ではスピン 1 重項の \mathbf{v} "=91 の準位にスピン 3 重項成分が ~10%ほど混在していることに着目し、この準位から出発することで観測されるスペクトルを単純化できることを見出した。単純化されたスペクトルにおいてはパリティによる選択 則が明瞭に現れており、指数付けが容易である。3 準位モデルを用いて回転定数を決定した 結果、測定された準位が(2)3 Σ であることを確認できた。

第5章は誘導ラマン断熱遷移を実現するために必要な光源の準備についてまとめている。 周波数コムを使う代わりに 900nm と 650nm の 2 波長域で高反射コーティングを施した ULE 共振器を用意し、半導体レーザーをロックして光源としている。温度調節、光学素子 の選択、電子回路の改良と様々な工夫を重ね、最終的には線幅 1Hz ながら 2GHz に渡って 連続的に掃引可能な光源を実現した。

第6章では以上の全ての成果を用いて実現した振動回転基底準位への誘導ラマン断熱遷移の実験について述べられている。第4章において決定された中間準位を用い、第5章で準備された光源によってラマン遷移を実現するわけだが、振動回転基底準位への遷移周波数を知るためには dark resonance の観測が欠かせない。しかし4章で用いられた Depletion spectroscopy では超微細構造が分離されておらず、dark resonance の観測は不可能である。本論文では cw laser による分子の減少(depletion)を観測する代わりに、他の準位への生成を観測する新しい高感度の分光法(Spontaneous-decay Induced Double Resonance, SpIDR)を開発し、冷却分子の自然幅での分光を初めて可能にした。その結果、上記の dark resonance の観測に成功し、確定した周波数を用いて振動回転基底準位への誘導ラマン断熱遷移に成功した。遷移の効率は70%以上であった。

第7章では以上の成果をまとめ、分子のトラップに向けた展望を述べている。

以上のように本研究は光会合をベースにした冷却分子生成法を追及し、各段階での困難に対しても、新しい分光法の開発や光源の安定化方法の開発を用いて対処し、最終的に振動回転基底準位の冷却分子を実現した完成度の高いものである。特にこの方法は従来より2桁以上高速な冷却分子生成を可能にしただけでなく、光会合可能な全ての原子種に適応可能であり、間接法による冷却分子生成の可能性を大きく広げるものとして重要な意義があるものと認められる。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。