

総説

3次元コヒーレント共鳴励起を用いたX線-VUV領域の2重共鳴と磁気サブレベルコントロール

中野祐司 nakano-y@riken.jp
理化学研究所 東原子分子物理研究室
平成22年8月15日原稿受付

1. はじめに

原子などの内部状態を変えるための手法として、原子衝突による手法と、光を使う手法は、様々な場面でしばしば比較される。多くの場合、光を使うことのメリットはその単色性にあり、状態選択的な原子制御が可能であるが、その一方、レーザーや放射光の利用できる波長領域は限られている。これに対し、衝突の過程では様々な非弾性過程が生じるため、特定の状態のみへ遷移させるということは容易でないが、衝突エネルギーとしてはmeV以下からTeV以上という広範なエネルギーが利用可能である。本稿では、この2つの手法の利点を併せ持った手法、すなわち、原子衝突を利用した状態選択的な原子状態の制御として、コヒーレント共鳴励起 (Resonant Coherent Excitation: RCE) [1, 2, 3, 4, 5, 6] による手法を解説する。

図1 (a) は、静止している原子が光を照射されて励起する様子を示している。このとき、半古典

近似において入射光は古典的な平面波であり、原子ハミルトニアンに対する周期的な摂動として取り扱われる。従って理論的には、光を当てなくとも原子に対して何らかの方法で $\mathbf{E}_0 \exp(-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})$ のような摂動を与えてやれば光励起と同様に原子遷移を起こすことができることになる。実際、このような現象は図1 (b) のように、原子衝突において標的原子が周期的に並んでいる場合に実現される。原子の静止系から見れば、周期場中を通過することは、時間的に周期的な摂動を受けるという意味で電磁波を照射されることと概念的に同等であり、光吸収と同様の条件で共鳴的に励起が起こるのである。これがコヒーレント共鳴励起の最も基本的な考え方である。もちろん光励起とは根本的に異なる現象であり、量子論的な取り扱いで現れる擬似光子は実光子と異なる分散関係を持ち、またRCE自体が回折現象としての側面も持ち合わせるなど、量子力学や散乱現象の根本に立ち返ることのできる興味深いテーマでもあるが、これらに関しては後半で議論することとする。

RCEによる遷移は、原理的にはその対象を選ばず、衝突実験の特徴である幅広いエネルギー領域を活かして、あらゆる周波数領域の共鳴が利用できる。現に農工大の畠山研ではレーザー冷却したRb原子を用いてRF領域のRCE実験が行われており [7, 8]、一方で本研究では加速器を利用することでX線領域の原子遷移を対象としている。本研究で利用する標的は、極めて精度よく周期的に配置された原子の集団、すなわちシリコン結晶である。これにより 10^{-10} m

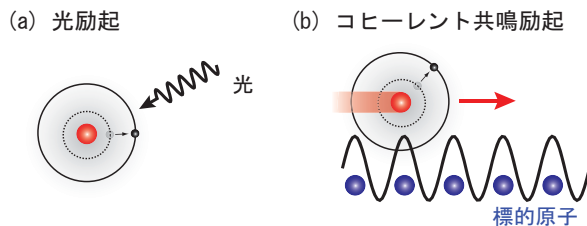


図1: (a) 光（電磁波）を照射されて励起する原子. (b) 周期的にならんだ標的原子が作る周期ポテンシャル中を通過する原子.

オーダーの周期ポテンシャルが利用でき、さらに光速近くまで加速されたイオンは 10^8 m/s の速度を持つため、その周波数は 10^{18} Hz に達する。これは X 線領域における RCE が実用できることを意味し、レーザーの利用が困難な短波長領域において原子状態の制御を可能とする有用な手法として期待できる。

本稿では、タイトルのとおり、磁気サブレベルのコントロールと、X 線-VUV 領域の 2 重共鳴に話を限定して基本から分かりやすく解説するとともに、原子衝突という視点からみたときの RCE 現象の本質を議論したい。他の実験なども含めた、より一般的、包括的な内容については、別の解説記事を参照頂ければ幸いである [9]。なお、本稿の図のいくつかは参考文献 [9, 10, 11] から一部修正して転載したものである。

2. 結晶場による RCE の基礎原理

結晶内の周期ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ はしばしば、

$$V(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} V_{\mathbf{g}} \exp(-2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}), \quad (1)$$

と、フーリエ級数の形で表され、 $V_{\mathbf{g}}$ はフーリエ係数、 \mathbf{g} は逆格子ベクトルである。この中をイオンが速度 \mathbf{v} で通過したときに感じる振動電場を求めるにはポテンシャル $V(\mathbf{r})$ を微分し、結晶の静止系からイオン静止系にローレンツ変換をすればよい。特殊相対論によれば、電場 \mathbf{F} 、磁場 \mathbf{B} は、速度 \mathbf{v} で動く慣性系において、

$$\mathbf{F}' = \gamma(\mathbf{F} + c\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{B}) - \frac{\gamma^2}{\gamma+1} \boldsymbol{\beta}(\boldsymbol{\beta} \cdot \mathbf{F}), \quad (2)$$

$$\mathbf{B}' = \gamma\left(\mathbf{B} - \frac{1}{c}\boldsymbol{\beta} \times \mathbf{F}\right) - \frac{\gamma^2}{\gamma+1} \boldsymbol{\beta}(\boldsymbol{\beta} \cdot \mathbf{B}), \quad (3)$$

とローレンツ変換変換される [12]。ここで c は光速、 $\boldsymbol{\beta} = \mathbf{v}/c$ 、 $\gamma = 1/\sqrt{1-|\boldsymbol{\beta}|^2}$ である。いま、結晶の静止系において磁場はなく、

$$\begin{aligned} \mathbf{F}(\mathbf{r}) &= -\nabla V(\mathbf{r}) \\ &= \sum_{\mathbf{g}} 2\pi i \mathbf{g} V_{\mathbf{g}} \exp(-2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{r}), \end{aligned} \quad (4)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = 0, \quad (5)$$

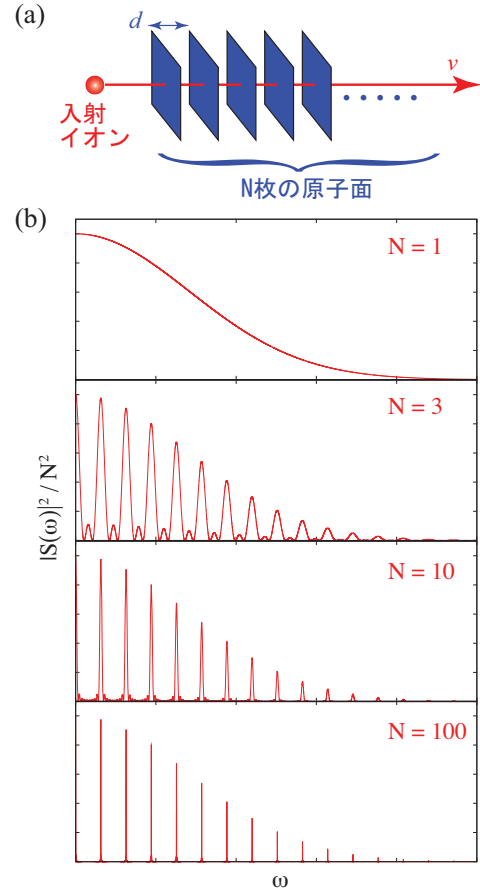


図 2: (a) N 個の標的原子が作る周期ポテンシャル中を通過するイオン、及び (b) イオンが感じる振動のフーリエスペクトル (強度は N^2 で規格化)。

であるので、これを (2) 式に代入すると、

$$\begin{aligned} \mathbf{F}'(\mathbf{r}', t') &= \sum_{\mathbf{g}} \mathbf{F}_{\mathbf{g}} \exp[-2\pi i \mathbf{g} \cdot \mathbf{v} t'] \\ &\times \exp\left[-2\pi i \mathbf{g} \cdot \left\{ \mathbf{r}' + \frac{\gamma^2}{\gamma+1} (\boldsymbol{\beta} \cdot \mathbf{r}') \boldsymbol{\beta} \right\}\right], \end{aligned} \quad (6)$$

$$\mathbf{F}_{\mathbf{g}} = \begin{pmatrix} F_{\mathbf{g}x} \\ F_{\mathbf{g}y} \\ F_{\mathbf{g}z} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 2\pi V_{\mathbf{g}} \gamma g_x \\ 2\pi V_{\mathbf{g}} \gamma g_y \\ 2\pi V_{\mathbf{g}} \gamma g_z \end{pmatrix}, \quad (7)$$

が得られ、これがイオンが感じる振動電場の形である。ただし、慣性系における位置座標と時間のローレンツ変換、

$$ct' = \gamma(ct - \boldsymbol{\beta} \cdot \mathbf{r}), \quad (8)$$

$$\mathbf{r}' = \mathbf{r} + \frac{\gamma^2}{\gamma+1} (\boldsymbol{\beta} \cdot \mathbf{r}) \boldsymbol{\beta} - \gamma \boldsymbol{\beta} ct, \quad (9)$$

を用いた。イオンの静止系では式 (3) の振動磁場も現れるが、これは電場に比べて十分小さ

いので無視できる．フーリエ係数 \mathbf{F}_g が振動電場の振幅ベクトルとなり，続く \exp 因子が周波数 $\gamma\mathbf{g}\cdot\mathbf{v}$ で振動する．つまり，振動電場 $\mathbf{F}'(t)$ は，逆格子ベクトル \mathbf{g} によって振幅ベクトルと周波数が決まる平面波の重ね合わせとなる．実空間で考えれば， \mathbf{g} は結晶面と一対一対応しており， $1/|\mathbf{g}|$ が原子面間隔に対応するので，各周波数成分は，それぞれ対応する原子面をイオンが通過する周波数と捉えられる．従って存在する結晶面の数だけ異なる周波数成分が現れ，これは高次の指数まで含めると無限にあるが，同時にフーリエ係数は小さくなるため，現実的に利用できる原子面の数は有限である．

ここでは原子が無限に並んでいるという過程のもとフーリエ級数を使った議論をしたが，現実には原子の数は有限であり，これはフーリエスペクトルの幅となって現れる．図2(a)のように高速イオンが N 枚の原子面を速度 \mathbf{v} で通過するとき感じる相互作用のフーリエスペクトルは，一つの原子面との相互作用スペクトルを $S_0(\omega)$ として，

$$|S(\omega)|^2 = |S_0(\omega)|^2 \frac{\sin^2(N\omega d/2v)}{\sin^2(\omega d/2v)}, \quad (10)$$

と表される [1]．ただし d はイオンの進行方向にそった原子面配列の周期である．原子面の枚数 $N = 1, 3, 10, 100$ の場合についての $|S(\omega)|^2$ を， N^2 でスケールして図2(b)に示した．つまり N が大きくなるにつれてスペクトルの強度は N^2 に比例して増加しており，同時にその幅は $1/N$ に比例して先鋭になっていく．原理的には標的の結晶を厚くして相互作用する原子の数を増やすことで Q 値の高い共鳴が期待できるわけだが，現実的な上限はイオン自身が標的原子とコヒーレントに相互作用することのできる平均自由行程で決まる．この距離は主に衝突の断面積で決まるので入射イオンの核種やエネルギー，標的によって変わるが，我々の実験条件においては数 μm のオーダーであると見積もられており，相当する原子数としては数 1000 個である．このような固体中のコヒーレンス長さに関する議論は，最近の薄膜を使用した実験や，2重共鳴

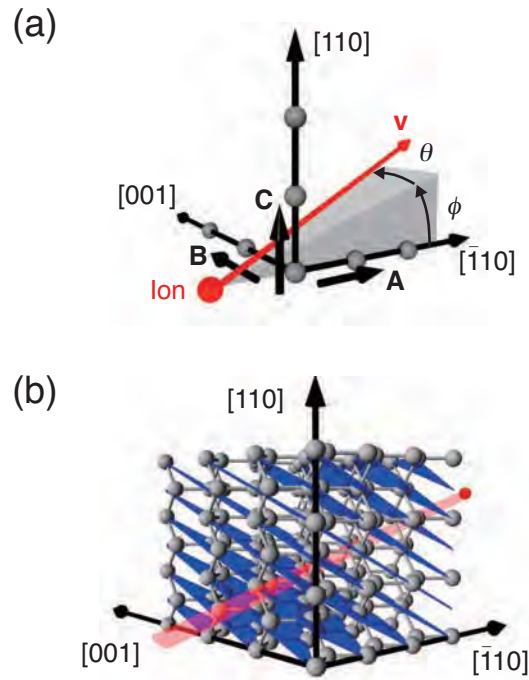


図3: (a) ダイヤモンド型結晶の基底ベクトル．(b) $(k, l, m) = (1, -1, -2)$ で指定される原子面を通過するイオン．

によるドレストアトムを観測などを通してようやく実験的に情報が得られるようになってきたところである．

3. 実験方法

式(6)では，イオンの感じる振動電場の周波数が $\gamma\mathbf{g}\cdot\mathbf{v}$ であることを示した．ここで，図3(a)に示すように，シリコン結晶（ダイヤモンド構造）を定義するための基底ベクトルを

$$\begin{cases} \mathbf{A} = (-1, 1, 0)a/2, \\ \mathbf{B} = (0, 0, 1)a, \\ \mathbf{C} = (1, 1, 0)a/2, \end{cases} \quad (11)$$

のようにとると，ミラー指数 (k, l, m) を用いて逆格子ベクトルは

$$\mathbf{g}_{k,l,m} = k\mathbf{A}^* + l\mathbf{B}^* + m\mathbf{C}^*, \quad (12)$$

と表される．ただし \mathbf{A}^* ， \mathbf{B}^* ， \mathbf{C}^* はそれぞれ逆格子空間の基底ベクトルである．図3(b)は，イオンが $\mathbf{g}_{1,-1,-2}$ で表される原子面を通過している様子を示している．(12)式で定義した逆格子ベクトル $\mathbf{g}_{k,l,m}$ を用いると，対応する周波数

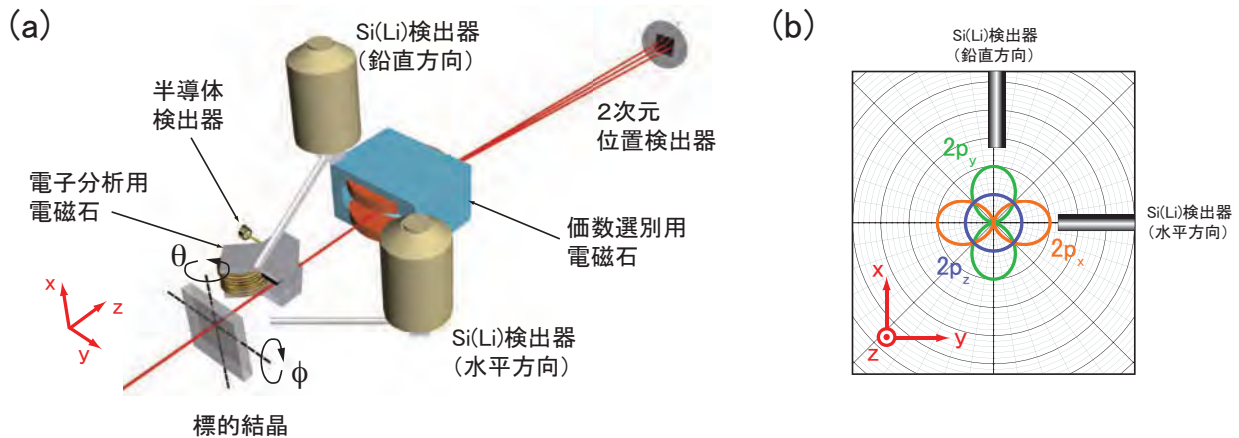


図 4: (a) 実験装置概略図. 標的結晶はゴニオメーターにマウントされている. (b) 励起状態の各磁気サブレベル ($2p_x$, $2p_y$, $2p_z$) から自然放出される X 線の角度分布, 及び検出器の配置 (イオン静止系).

$\nu_{k,l,m}$ は, 入射角 θ, ϕ の関数として,

$$\begin{aligned} & \nu_{k,l,m}(\theta, \phi) \\ &= \gamma \mathbf{v} \cdot \mathbf{g} \\ &= \frac{\gamma v}{a} \{ (\sqrt{2}k \cos \phi + \sqrt{2}m \sin \phi) \cos \theta + l \sin \theta \}, \end{aligned} \quad (13)$$

と得られる. これがイオンの遷移エネルギー ΔE と一致する時, すなわち $\Delta E = h\nu_{k,l,m}(\theta, \phi)$ を満たすときに RCE が起こり得る.

実験的には, 標的結晶を高精度回転装置 (ゴニオメーター) にマウントし, イオンビームに対して精度よく結晶の角度を調節することで, イオンが感じる周波数をスキャンすることができる (図 4(a)). 周波数が共鳴条件を満たして RCE が起これば励起されたイオンビームからの脱励起光が観測され, また結晶内での電子損失確率にも変化が現れるため, 以下 3 つの手法を用いてこれらの変化を観測する.

1. 脱励起光の観測

いま対象としている RCE 遷移は X 線領域であるので, 励起イオンは X 線を自然放出して基底状態へ脱励起する. この X 線収量を, 入射角度の関数として Si(Li) X 線検出器で計測する.

2. 価数分布の観測

結晶内で共鳴的に励起されたイオンは, 結晶原子との衝突によって電離割合が増加する. 例えば水素様イオンの $1s$ 電子と $2p$ 電子では電離断面積が約 4 倍異なる. 従って

RCE 条件が満たされた時に電離割合が増加するため, 荷電選別電磁石と 2 次元位置検出器によって透過イオンの価数分布を測定する.

3. 放出電子の観測

価数分布の測定と同じ観測原理であるが, イオンの価数ではなく, 衝突電離によってイオンから剥がされた電子そのものを観測する. イオンから剥がされた電子はイオンビームと等速度で飛んでいるため (コンボイ電子), 結晶の後方に小型の電磁石を置いて電子のみを 90 度偏向して半導体検出器で検出する.

これら 3 つの手法はそれぞれ異なった利点を持ち, X 線の観測においてはその放出角度分布から励起状態の磁気サブレベルに関する情報を得ることができる. 一方で価数分布の観測では透過イオン全てを 2 次元位置検出器で検出するため検出効率は 100% であり, また電子の観測では衝突電離と自動電離によって放出された電子をそのエネルギーから区別して観測できるほか, その運動量幅には束縛状態のコンプトンプロファイルが反映される. これらの手法を適宜組み合わせることで原子状態や共鳴ダイナミクスに関する様々なデータを取得することができるが, 本稿では主に脱励起 X 線の観測結果に焦点を絞って解説する.

4. 磁気サブレベルを特定した原子状態制御

イオン静止系における振動結晶場 $\mathbf{F}'(t')$ は、式 (6) より、各々の偏光方向と周波数をもつ振動成分の重ね合わせである。このうちのひとつがイオンの遷移エネルギーに一致して共鳴励起が起こるため、RCEは直線偏光したX線レーザーによる光励起に相当する。言い換えれば、共鳴に利用する逆格子ベクトル \mathbf{g}_{klm} を選択することで、振動電場の偏光を制御し、磁気サブレベルを特定した原子状態のコントロールが可能となる。図 5(a) と (b) は、様々な \mathbf{g}_{klm} に対応する周波数成分を利用して 416 MeV/u の He-like Ar^{16+} 、および 423 MeV/u の He-like Fe^{24+} イオンの RCE ($1s^2 \ ^1S_0 \rightarrow 1s2p \ ^1P_1$) を観測した結果を表している。それぞれ $\phi = -0.23^\circ$ 、 -0.11° において θ を走査した。横軸は入射角度 θ 、及び式 (13) を用いて変換された励起エネルギー、縦軸は Si(Li) 検出器（水平、鉛直）における脱励起 X 線収量であり、RCE 条件が満たされた入射角に鋭いピークを持つとともに、それぞれ顕著な放出角分布を示している。(1,-1,0) 成分で励起された場合は水平方向に比べて鉛直方向の強度が倍以上であるのに対し、(1,-1,-2) 成分ではその強度比が逆転している。さらに (1,-1,-4) 成分では水平方向にはほとんど X 線が検出されていない。 Fe^{24+} イオンの場合も傾向は同様に、ミラー指数 m が大きくなって原子面が倒れていくに従って振動電場の偏光方向は x 方向に傾き、水平方向への放出が優勢になっていく。

いま $2p$ から $1s$ 状態への脱励起は電気双極子遷移であるので、X 線の放出角度分布 $I(\xi)$ は双極子モーメントからの角度 ξ に対して $I(\xi) = \sin^2 \xi$ の分布を持つ。イオン静止系において $2p_x$ 、 $2p_y$ 、 $2p_z$ 各磁気副準位からの脱励起光の角度分布を表すと図 4(b) のようになり、鉛直方向の検出器は $2p_y$ と $2p_z$ 、水平方向の検出器は $2p_x$ と $2p_z$ 状態からの発光を検出可能である。振動電場の偏光方向は (7) 式で与えられるため、各副準位への励起確率を考慮して鉛直・水平方向へ放出され

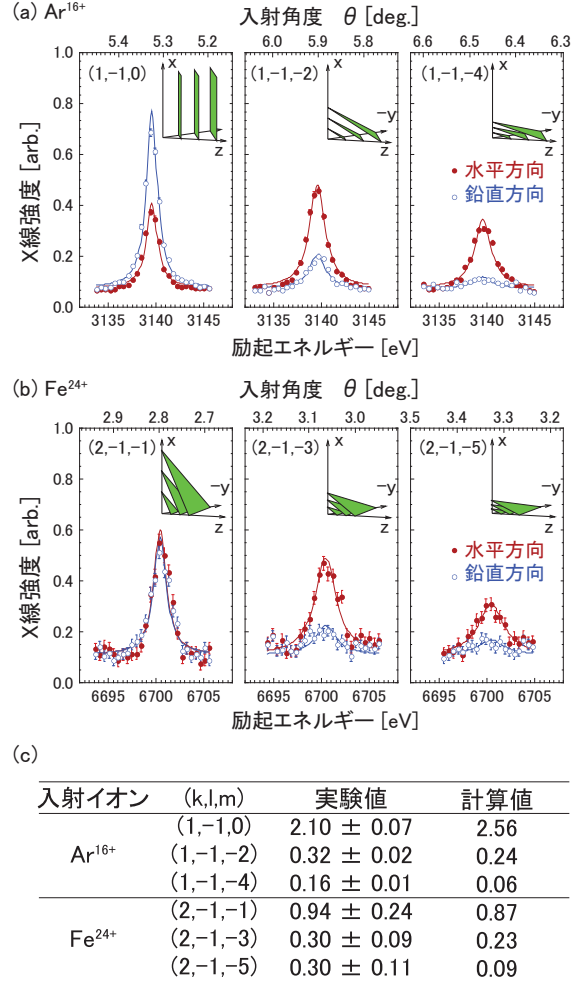


図 5: (a)416 MeV/u Ar^{16+} イオン、および (b) 423 MeV/u Fe^{24+} イオンを、様々な周波数成分を用いて $1s2p$ に励起した際に得られた、水平、鉛直方向の脱励起 X 線強度。使用した周波数成分に対応するミラー指数 (k, l, m) と原子面の向きを枠内に示してある。(c) $I_{\text{鉛直}}/I_{\text{水平}}$ の実験値と計算値 [11]。

る X 線強度の比 $I_{\text{鉛直}}/I_{\text{水平}}$ を見積もると図 5(c) のようになり、実験値と非常に良く一致している。これは直線偏光した振動結晶場を用いて励起状態のアライメントが実現されており、さらに \mathbf{g}_{klm} を選択することでその方向が制御できていることを示している。

このような手法を用いると、固体内の衝突やエネルギー損失等における原子の内部状態や波動関数の形、向きの効果などに関連した詳細なダイナミクスの解明へ向けた新たな実験的研究への展開が期待される。また結晶中で進行方向にアラインされた状態から放出される電子の、

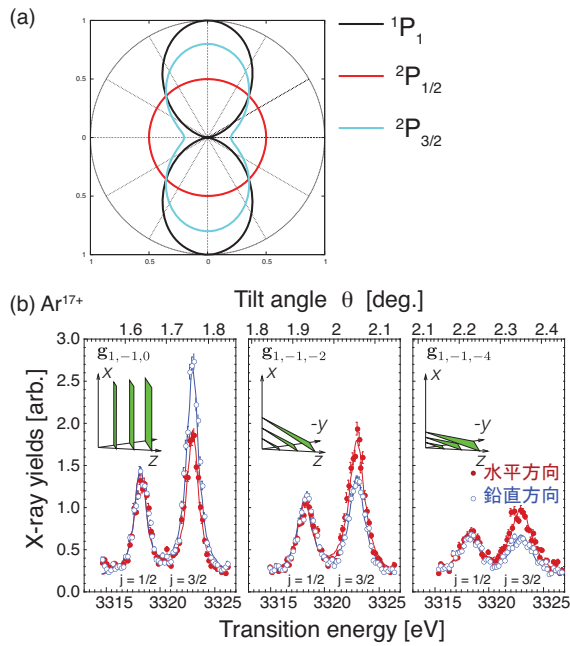


図 6: (a) $1s2p$ (1P), および $2p$ (2P) からの脱励起光の双極子モーメントに対する放出角度分布. (b) 390 MeV/u の水素様 Ar^{17+} イオンを, 様々な周波数成分を用いて $2p$ へ励起した際に得られた, 水平, 鉛直方向の脱励起 X 線強度. 2つのピークがそれぞれ $2p_{1/2}$, $2p_{3/2}$ への RCE に対応する.

アンチカusp型コンプトンプロファイル [13] の観測に向けた実験も進行中である.

入射イオンが水素様の場合はスピン軌道相互作用によって軌道角運動量の磁気量子数は, よい量子数ではなくなる. その結果, これらの状態からの脱励起光の放射角度分布は,

$$I(\xi) = \begin{cases} 1 & (\text{for } 2p_{1/2}), \\ (1 - \frac{3}{5} \cos 2\xi)/2 & (\text{for } 2p_{3/2}), \end{cases} \quad (14)$$

となる [14]. つまり図 6(a) に示すように, $2p_{1/2}$ からの放射は完全に等方的となり, $2p_{3/2}$ は双極子放射がやや丸みをおびたような形になる. これを 390 MeV/u の H-like Ar^{17+} イオンを用いて実際に測定すると図 6(b) のようになり, $2p_{1/2}$ からの放射には異方性が観測されなかった. 一方 $2p_{3/2}$ からの放射には異方性が残るものの, 同条件で測定した He-like イオン (図 5(a)) と比較するとその異方性は弱まる傾向となり, 理論と一致する. このように, 3次元コヒーレント共鳴励起を用いると $2p$ 状態の微細構造を分離するほどのエネルギー分解能を持ちながら, 偏光

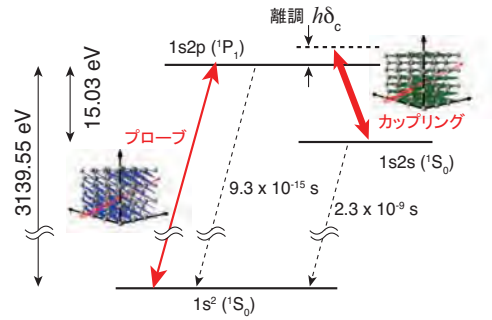


図 7: ヘリウム様 Ar^{16+} の Λ 型 3 準位系.

を制御して角度異方性を効率よく観測することが可能である. これは Si(Li) 検出器を利用することで結晶分光器等に比べて大幅に大きい検出立体角を得ながらも, エネルギー分解能自身は検出器ではなく標的結晶の角度分解能で決まるからであり, レーザー誘起蛍光 (LIF) 分光などと同様の測定原理である.

5. X 線-VUV 領域の 2 重共鳴

振動結晶場の 2 つの周波数成分を同時に利用すると, 3 準位系における 2 重共鳴実験を行うことができる. 異なる 2 準位間の遷移エネルギー ΔE_1 , ΔE_2 に対して

$$\begin{cases} \Delta E_1 = h\nu_{k,l,m}(\theta, \phi), \\ \Delta E_2 = h\nu_{k',l',m'}(\theta, \phi), \end{cases} \quad (15)$$

のとき 2 重共鳴条件が満たされ, 波長の異なる 2 つの共鳴光を同時に照射することに相当する [15]. 例えば図 7 のような Λ 型の 3 準位系において, $\nu_{0,0,-2}$ が $2^1P - 2^1S$ 遷移 (15.03 eV), $\nu_{1,-1,-2}$ が $1^1S - 2^1P$ 遷移 (3139.55 eV) の共鳴条件をそれぞれ満たすような条件で実験を行うことが可能である. さらに, 式 (13) より, $\theta \ll 1$ の条件下では $\nu_{0,0,-2}$ は θ に依存しないため, θ 回転によって $\nu_{1,-1,-2}$ のみを単独にスキャンすることができ, これはまさに X 線領域において RCE を利用したポンプ・プローブ実験が可能なることを意味する. ここでは $\nu_{0,0,-2}$, $\nu_{1,-1,-2}$ をそれぞれカップリング周波数, プローブ周波数と呼ぶ. カップリング周波数を固定した状態でプローブ周波数をスキャンした際に得られた X 線の収量

を図 8(a) に示した. ただし,

$$h\delta_c = \Delta E[2^1P-2^1S] - h\nu_{0,0,-2}, \quad (16)$$

はカップリングの離調である (図 7). 鉛直方向で得られたスペクトルは 1^1S-2^1P の遷移エネルギー (3139.55 eV) に RCE の共鳴ピークをもつ のに対して, 水平方向ではピークの位置が δ_c に

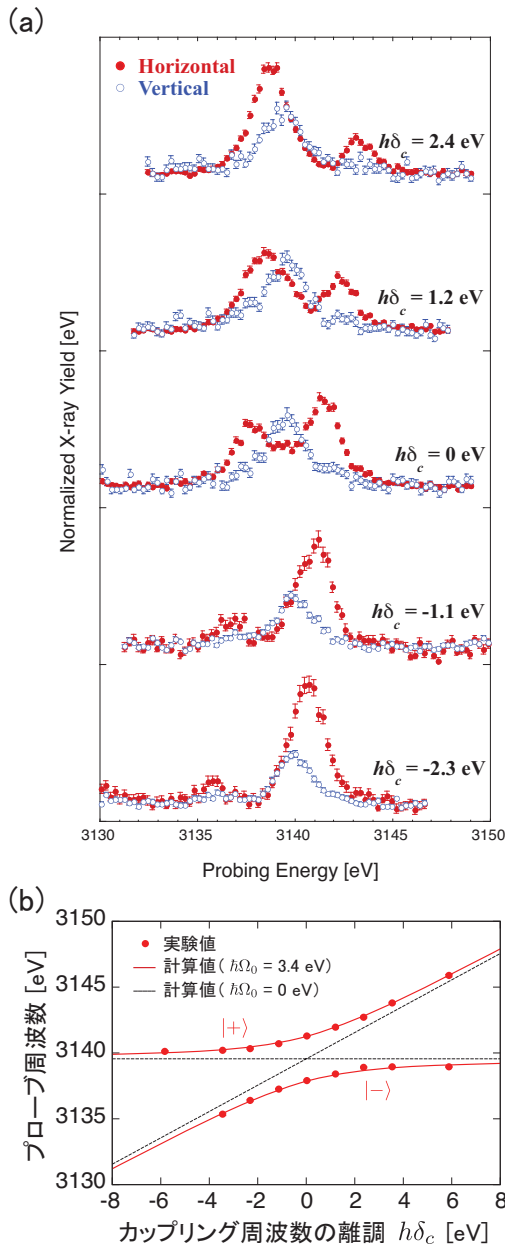


図 8: (a) カップリング周波数の離調 δ を固定してプローブ周波数をスキャンしたときの 416 MeV/u Ar^{16+} の脱励起 X 線収量. (b) 離調 δ に対する共鳴ピーク位置の変化 (X 線ではなく価数分布の測定結果を使用). 実線はドレストアトム模型による計算値 [10].

依存してシフトし, $\delta_c = 0$ では完全に 2 つに分裂している. これは Autler-Townes (AT) 2 重項と呼ばれ, 電磁場との強い相互作用によって原子のエネルギー準位がラビ分裂すること起因する [16]. AT 2 重項は高強度レーザー分光などでしばしば現れ, ドレストアトム (光の衣をまとった原子) という概念によって直感的に説明される [17, 18]. 実験で得られた AT 2 重項のピーク位置を離調 $h\delta_c$ の関数としてプロットすると (図 8 (b)), “avoided level crossing” の様子が得られる. 実線および点線は, $h\Omega_0 = 0, 3.4$ eV について, 一般的なドレストアトム模型によって計算したドレスト状態への遷移エネルギー

$$\Delta E^\pm = \Delta E[1^1S-2^1P] \pm \hbar\sqrt{\Omega_0^2 + \delta_c^2}, \quad (17)$$

である. ただし $h\Omega_0$ は $2^1P - 2^1S$ 間のラビ周波数であり, $\delta_c = 0$ のスペクトルの分裂幅から得られた実験値 (3.4 eV) を使用した. 実験結果は見事に計算値に従っており, レーザー照射と同様に高強度の振動結晶場によってもドレスト状態が形成されることを観測した [10]. これは結晶場によって $2s - 2p$ 間が強く結合され, 2 状態の線形結合で表されるようなコヒーレントな量子状態ができていていることを示している. このような AT 2 重項が観測されるためには少なくともラビ振動の周期の 2 倍程度のコヒーレンス時間が必要であり, いまラビ周波数が 3.4 eV であることから, イオンは数 μm の距離を $2s - 2p$ 間の位相情報を保ったまま進んでいるということになる.

さて, 図 8(a) において, 鉛直方向のスペクトルでは AT 2 重項が観測されていなかったが, これは前項で解説した振動電場の偏光に深く関係している. いまカップリングに使っている $\nu_{0,0,-2}$ は, 式 (7) より x 方向に偏光しており, 一方で図 4(b) より鉛直方向の検出器は $2p_x$ からの発光を検出できない. つまり図 9 (a) のように, ドレスト状態を形成しているのはひとつの $2p_x$ 副準位だけで, $2p_y$ および $2p_z$ は無摂動状態 (原子ハミルトニアン固有状態) のままであると

予想できる．これは偏光制御によって磁気副準位を特定したプローブを行うことで実験的に確かめられる．図9(b)はプローブに利用する偏光の向きを変化させた結果であり，カップリングと垂直方向に偏光したプローブ周波数 $\nu_{1,-1,0}$ を利用すると AT 2 重項は全く観測されない．これは $\nu_{1,-1,0}$ が $2p_x$ 副準位を励起しないからであり，一方で偏光方向がカップリングとほぼ平行である $\nu_{1,-1,4}$ を利用すると，AT 2 重項を形成している $2p_x$ 成分のみを選択的にプローブすることが分かる．このように，偏光制御と2重共鳴のテクニックを組み合わせることで磁気サブレベルを特定したポンプ・プローブ実験が，X線およびVUV領域で実現される [11]．

6. 結晶場による RCE の量子論

本稿の冒頭では，振動結晶場による摂動の結果として半古典論的に RCE を説明したが，ここでは量子論的な取扱いについて論ずる．なぜならば，前項のようなドレストアトム模型を持ち出すためには電磁場の第二量子化による『光子』の概念が必要となるからである．ところが

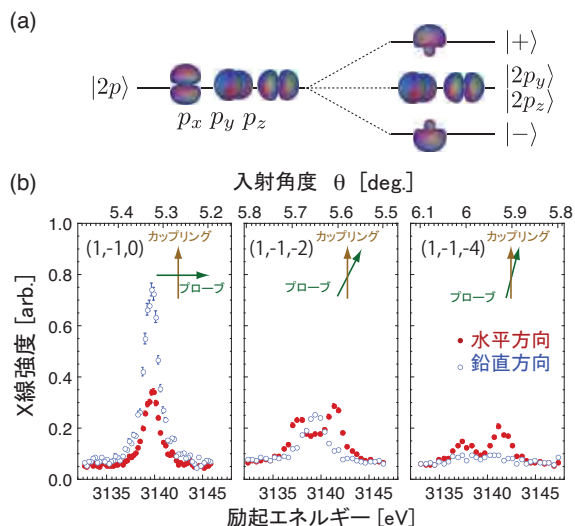


図 9: (a) $2p$ 状態のエネルギー準位．カップルされていない状態 (左) と， x 方向の直線偏光でカップルされた状態 (右)．(b) $\delta = 0$ の条件において，様々な周波数成分でプローブしたときの X 線強度．使用した成分，およびカップリング，プローブの相対的な偏光方向を枠内に示してある [11]．

光励起において原子が電磁場と光子のやり取りをするのに対して，RCE ではイオンは結晶場から直接エネルギーを受け取ることはない．実は RCE の励起エネルギー源はイオンの並進運動であり，これが光励起と根本的に異なる点である．この点を矛盾無く取り入れ，ドレストアトム模型を修正した形で RCE を説明することができる．

まず簡単のために図 10(a) のような，エネルギー差が $\hbar\omega_{12}$ である 2 準位 $|1\rangle$, $|2\rangle$ を持つ原子と， $\mathbf{F} \cos \omega_L t$ で表されるレーザー場の相互作用を考える．本項では RCE の量子論的な描像をより直感的に理解するために煩雑な数式を避け，非相対論的な議論にとどめる．一般的なドレストアトム模型において原子と電磁場及び相互作用を含めた全系のハミルトニアン H は， $H = H_A + H_L + V_{AL}$ と表され，

$$H_A = \frac{1}{2} \hbar \omega_{12} (|2\rangle\langle 2| - |1\rangle\langle 1|), \quad (18)$$

$$H_L = \hbar \omega_L (\hat{a}^\dagger \hat{a}), \quad (19)$$

$$V_{AL} = -e\mathbf{d} \cdot \mathbf{F} (|2\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle 2|) (\hat{a}^\dagger + \hat{a}), \quad (20)$$

である．ただし \hat{a}^\dagger 及び \hat{a} は光子の生成，消滅演算子， $\mathbf{d} = \langle 2|\mathbf{r}|1\rangle = \langle 1|\mathbf{r}|2\rangle$ は電子双極子遷移の遷移行列要素である [19]．例えば場に光子が N 個あり，原子が上準位にいるときの状態は $|2\rangle|N\rangle = |2, N\rangle$ と表され，無摂動状態の固有値方程式は

$$(H_A + H_L)|2, N\rangle = \left(\frac{\hbar\omega_{12}}{2} + N\hbar\omega_L \right) |2, N\rangle, \quad (21)$$

のようになり，原子の内部エネルギーと光子場のエネルギーの合計が系の固有エネルギーとなる．

これを RCE に適用するため，以下のように光子場のハミルトニアン H_L をイオン並進運動のハミルトニアン H_T に置き換え，相互作用ハミルトニアン V_{AL} に結晶ポテンシャルを使用する．

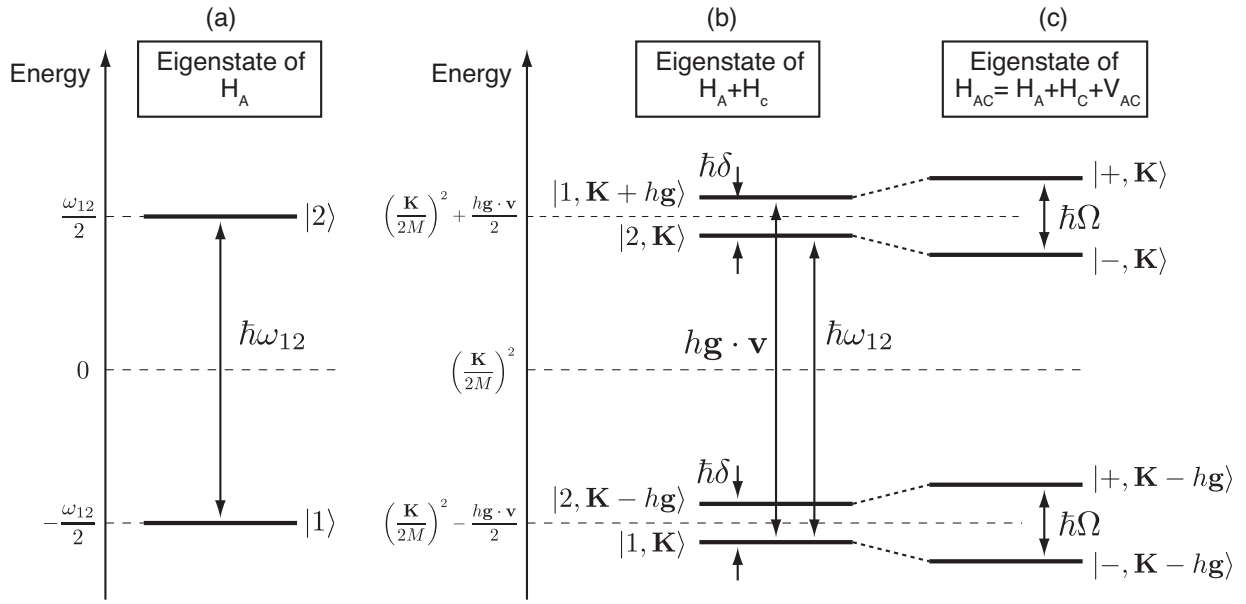


図 10: (a) 原子の内部状態, (b) 原子の内部状態+並進運動, (c) 結晶場によってカップルされた原子の内部状態+並進運動のエネルギー準位.

$$H_T = -\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2M}, \quad (22)$$

$$V_{AL} = -eV_{\mathbf{g}} \exp\{-2\pi i \mathbf{g} \cdot (\mathbf{R} + \mathbf{r})\}, \quad (23)$$

ただし M はイオンの質量である. これを用いると無摂動状態の固有値方程式は, イオンの並進運動量を \mathbf{K} として,

$$(H_A + H_T)|2, \mathbf{K}\rangle = \left(\frac{\hbar\omega_{12}}{2} + \frac{\mathbf{K}^2}{2M}\right)|2, \mathbf{K}\rangle, \quad (24)$$

となり, 内部エネルギーと並進エネルギーの計が固有値となる. 逆格子ベクトル \mathbf{g} が RCE に近いとき, つまり

$$\hbar\omega_{12} = \hbar\mathbf{g} \cdot \mathbf{v} - \hbar\delta, \quad (25)$$

で離調 δ が小さい時の, 無摂動状態のエネルギー準位を図 10(b) に示す. イオンは並進運動量 \mathbf{K} を連続的にとることができるが, その状態からはブラッグ反射に対応する逆格子ベクトル分の運動量変化を伴う遷移のみが許される. 上記の条件下 ($\delta \ll 1$) では, イオンが上準位で並進運動量 \mathbf{K} で飛んでいる状態 $|2, \mathbf{K}\rangle$ は, $|1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g}\rangle$ とエネルギーがほぼ縮退し, この 2 状態間には相互作用 V_{AL} が働く. これは通常のドレストアトム模型において, 吸収条件下で $|2, N\rangle$ と $|1, N + 1\rangle$ が縮退することに相当している. この 2 準位間

に相互作用があれば縮退が解けてエネルギーが分裂し, 新たな固有状態を作る. これがドレスト状態である.

相互作用 V_{AL} を含めた全ハミルトニアンは, $|1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g}\rangle, |2, \mathbf{K}\rangle$ をベースとした行列表示にて,

$$H_{11} = \frac{\mathbf{K}^2}{2M} + \frac{\hbar\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}}{2} + \frac{\hbar\delta}{2}, \quad (26)$$

$$H_{22} = \frac{\mathbf{K}^2}{2M} + \frac{\hbar\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}}{2} - \frac{\hbar\delta}{2}, \quad (27)$$

$$H_{12} = \frac{\hbar\Omega_0^*}{2}, \quad (28)$$

$$H_{21} = \frac{\hbar\Omega_0}{2}, \quad (29)$$

と表され, ラビ振動数 $\Omega_0 = |\Omega_0|e^{i\alpha}$ は,

$$\begin{aligned} \frac{\hbar\Omega_0}{2} &= \langle 2, \mathbf{K} | V_{AL} | 1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g} \rangle, \\ &= -eV_{\mathbf{g}} \langle 2, \mathbf{K} | \exp\{-2\pi i \mathbf{g} \cdot (\mathbf{R} + \mathbf{r})\} | 1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g} \rangle, \end{aligned} \quad (30)$$

で与えられる.

これより系の固有状態, すなわちドレスト状態は

$$\left\{ \begin{array}{l} |+, \mathbf{K}\rangle \\ = \sin \epsilon |1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g}\rangle + e^{i\alpha} \cos \epsilon |2, \mathbf{K}\rangle, \\ |-, \mathbf{K}\rangle \\ = e^{-i\alpha} \cos \epsilon |1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g}\rangle - \sin \epsilon |2, \mathbf{K}\rangle, \end{array} \right. \quad (31)$$

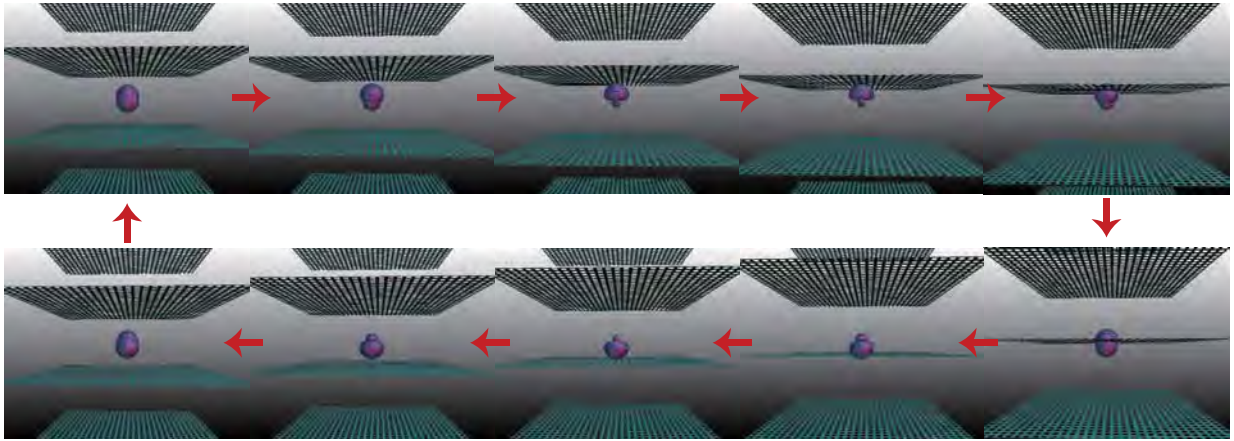


図 11: ドレスト状態 $|+, \mathbf{K}\rangle$ の原子の波動関数の時間変化, および $\mathbf{g}_{0,0,-2}$ で指定される原子面.

と 2 状態の線形結合の形で得られ, 混合角 ϵ は

$$\tan 2\epsilon = -\frac{|\Omega_0|}{\delta}, \quad (32)$$

で与えられる.

分裂したドレスト状態の一方 ($|+, \mathbf{K}\rangle$) について, 波動関数の形の時間変化と, カップリングに利用された $\mathbf{g}_{0,0,-2}$ で指定される原子面の関係を図 11 に示した. 原子面を乗り越える周期で p 状態と s 状態の波動関数が混合角 ϵ で混じり合っている. 他方の $|-, \mathbf{K}\rangle$ も同様であるが混合の位相が反転するために波動関数の形は上下を反転した形となる. このようにして得られたドレスト状態のエネルギー固有値は

$$E^{(\pm)} = \frac{\mathbf{K}^2}{2M} + \frac{\hbar \mathbf{g} \cdot \mathbf{v}}{2} \pm \hbar \sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}, \quad (33)$$

となり, \pm の項により分裂エネルギーが得られる. また, これより基底状態 1S から $|+, \mathbf{K}\rangle$, $|-, \mathbf{K}\rangle$ への励起エネルギーは式 (17) のように得られる. このように, ドレストアトム模型と同じアプローチで RCE を統一的に記述することができる. RCE では, 光励起においてエネルギーと運動量の交換を担う光子 1 つの役割を, 逆格子ベクトル \mathbf{g} が果たしていることが分かる. このとき \mathbf{g} に対応する運動量は結晶運動量とも呼ばれる. 実際の光子は分散関係 $E = pc$ をもつ横波であるのに対し, ここで登場した奇妙な擬似光子は, $E = pc\beta$ という光とは異なる分散関係を持ち, さらに式 (7) で示されるように, 縦波

成分も持つが, $\beta \rightarrow 1$ の極限では光と同様に横波となる.

一方, RCE 過程の前後で入射イオンの運動量が逆格子ベクトル分だけ変化していることに目を付けると, これは回折現象の一種であるとも解釈できる. 共鳴条件 $\Delta E = \hbar\nu$ と同等の条件は, RCE 前後の入射イオンの波数 \mathbf{k} , 及び $\mathbf{k} - \mathbf{g}$ を用いて

$$E(\mathbf{k}) = E(\mathbf{k} - \mathbf{g}) + \Delta E, \quad (34)$$

と表され, このとき $|1, \mathbf{K} + \hbar\mathbf{g}\rangle$ と $|2, \mathbf{K}\rangle$ のエネルギーが Brillouin zone 内で交差し, 内部状態の遷移が起こる [20]. 通常, 粒子線の回折現象は比較的ド・ブロイ波長が長く波動性が顕著となる電子線や熱中性子 ($10^{-10} \sim 10^{-12}$ m) について観測されるが, 本実験で用いている高エネルギー重イオンビームのド・ブロイ波長は 2×10^{-16} m (200 アトメートル) と極端に短い. このような粒子において, 波としての性質である回折現象が起こっていることは驚きである. だが, 結晶との相互作用において逆格子ベクトル分の運動量移行のみが許され, 終状態としてそのような波数変化の散乱波が強い強度をもつ, というのは回折現象に他ならず, 古典運動する粒子では起こりえないことである. これは世界で最も短い波長の粒子線回折を観測したことになるとともに, 高エネルギーの重イオンが波としての位相を保ったまま固体の標的中を通過してい

るという事実も大きく直感に反する．ところが実は，この程度のエネルギー領域では，位相が変化するような衝突の断面積はイオンの速度と共に減少するため，このような現象を観測するためには有利に働く．シリコン結晶の格子間隔程度における 400 MeV/u Ar イオンの回折角は $100 \mu\text{rad}$ のオーダーであり，通常の方法では容易に観測し得ないが，本手法では RCE という過程を介して，イオンの内部状態をプローブとしてこの回折現象が観測されている．

7. まとめと今後の展開

このように，本研究では 3 次元コヒーレント共鳴励起において“偏光の制御”と“2 重共鳴”という 2 つのアイデアを導入した．これによりレーザーの利用が困難な X 線領域において，原子状態を自在にコントロールすることができるようになってきた．これは，単に共鳴現象の観測にとどまっていた従来の 30 年間の研究とは切り口の異なった RCE 研究の新たな展開であり，短波長領域の原子物理の発展を後押しする強力なツールとして期待が持てる．

例えば，RCE を利用して He 様や Li 様の重イオンの二重励起や三重励起状態，すなわち中空イオンを選択的に作ることに成功しており，これは他の手法では容易ではない．このようなエキゾチックな原子の構造や崩壊ダイナミクスを詳細に観測するための実験を現在準備中である．

一方で分光としての側面に目を向けると，RCE によるエネルギースペクトルは，結晶分光器で得られるスペクトルと同等，またはそれ以上の分解能を持っている．さらにドップラー広がりやシフトの影響を受けない，少量のイオンでも効率よく観測が可能であるなど，分光器に対する利点も多い．より高エネルギーのイオンを利用すれば分光可能なエネルギーは γ 線の領域に達し，原子核研究への応用も見込める．このような特徴を活かし，strong-field QED の検証を目的とした多価ウラニウムイオンの分光研究をドイ

ツ GSI において行い，Li 様 U^{89+} イオンの $1s^2 2s - 1s^2 2p_{3/2}$ 遷移の RCE も観測している [21]．今後，蓄積リング ESR におけるイオンビームの電子冷却などと組み合わせることでイオンビームの速度広がりを抑え，さらなる超高分解能分光法としても展開していく予定である．

8. 謝辞

本研究は著者の博士論文のテーマとして東俊行教授の指導のもと，近藤力，畠山温，中井陽一，小牧研一郎，山崎泰規各氏との共同研究にて行われました．ここに深く感謝致します．また実験を行うにあたり，極めて高品質の重イオンビームを供給して頂いた高田栄一，村上健両氏をはじめとする放医研 HIMAC の AEC 実験サポートグループ，オペレーターの方々に感謝します．

本研究は日本学術振興会より科研費基盤 S，及び特別研究員奨励費の助成を受けて行われました．

参考文献

- [1] V. V. Okorokov. *JETP Lett.*, 2:111, 1965.
- [2] S. Datz, C. D. Moak, O. H. Crawford, H. F. Krause, P. F. Dittner, J. Gomez del Campo, J. A. Biggerstaff, P. D. Miller, P. Hvelpumd, and H. Knudsen. *Phys. Rev. Lett.*, 40:843, 1978.
- [3] S. Datz, C. D. Moak, O. H. Crawford, H. F. Krause, P. D. Miller, P. F. Dittner, J. Gomez del Campo, J. A. Biggerstaff, H. Knudsen, and P. Hvelpumd. *Nucl. Instr. and Meth.*, 170:15, 1980.
- [4] K. Komaki, T. Azuma, T. Ito, Y. Takabayashi, Y. Yamazaki, M. Sano, M. Torikoshi, A. Kitagawa, E. Takada, and T. Murakami. *Nucl. Inst. and Meth. B*, 146:19, 1998.
- [5] T. Azuma, T. Ito, K. Komaki, Y. Ya-

- mazaki, M. Sano, M. Torikoshi, A. Kitagawa, E. Takada, and T. Murakami. *Phys. Rev. Lett.*, 83:528, 1999.
- [6] T. Azuma, Y. Takabayashi, C. Kondo, T. Muranaka, K. Komaki, Y. Yamazaki, E. Takada, and T. Murakami. *Phys. Rev. Lett.*, 97:145502, 2006.
- [7] A. Hatakeyama. *Appl. Phys. B*, 92:615, 2008.
- [8] A. Hatakeyama, Y. Enomoto, K. Komaki, and Y. Yamazaki. *Phys. Rev. Lett.*, 95:253003, 2005.
- [9] 中野祐司, 東俊行. 解説 : 周期場を使った X 線領域の原子状態制御. *日本物理学会誌*, 65:516, 2010.
- [10] Y. Nakai, Y. Nakano, T. Azuma, A. Hatakeyama, C. Kondo, K. Komaki, Y. Yamazaki, E. Takada, and T. Murakami. *Phys. Rev. Lett.*, 101:113201, 2008.
- [11] Y. Nakano, C. Kondo, A. Hatakeyama, Y. Nakai, T. Azuma, K. Komaki, Y. Yamazaki, E. Takada, and T. Murakami. *Phys. Rev. Lett.*, 102:085502, 2009.
- [12] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics 2nd Edition*. John Wiley & Sons, Inc., 1975.
- [13] J. Burgdörfer, M. Breinig, S. B. Elston, and I. A. Sellin. *Phys. Rev. A*, 28:3277, 1983.
- [14] N. Andersen and K. Bartschat. *Polarization, Alignment, and Orientation in Atomic Collisions*. Springer, 2001.
- [15] Y. Nakano, S. Masugi, T. Muranaka, T. Azuma, C. Kondo, A. Hatakeyama, K. Komaki, Y. Yamazaki, E. Takada, and T. Murakami. *J. Phys. Conf. Ser.*, 58:359, 2007.
- [16] S. H. Autler and C. H. Townes. *Phys. Rev.*, 100:703, 1955.
- [17] C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud. *J. Phys. B*, 10:345, 1977.
- [18] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications*. Wiley-Interscience, 1992.
- [19] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Atom-Photon Interactions: Basic Processes and Applications*. J. Wiley, 1992.
- [20] J. Kondo. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 36:1406, 1974.
- [21] Y. Nakano, Y. Takano, T. Shindo, T. Ikeda, Y. Kanai, S. Suda, T. Azuma, H. Bräuning, A. Bräuning-Demian, Th. Stöhlker, D. Dauvergne, and Y. Yamazaki. *J. Phys. Conf. Ser.*, submitted.