

東原子分子物理研究室
Atomic, Molecular & Optical Physics Laboratory

主任研究員 東 俊行 (工博)
AZUMA, Toshiyuki (D. Eng.)



キーセンテンス：

1. 静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突
2. 先端光源を用いた新しい原子分子光物理学の開拓
3. 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起

キーワード：

原子分子物理, 原子衝突, イオン蓄積リング, 静電リング, イオントラップ, 真空孤立1分子, クラスター, 液滴, 合流衝突, 低温反応, 励起イオン, 準安定イオン, 放射性冷却, 宇宙における化学進化, 生体分子イオン反応, レーザー分光, 超短パルス高強度レーザー, 時間分解分光, コヒーレント制御, 多価イオン, 重イオン, 高速イオン, チャネリング, コヒーレント共鳴励起, 多電子励起状態, 脱励起 X 線, 単結晶

研究概要

当研究室では、宇宙における分子進化の理解から大型複雑分子のダイナミクスや原子と強光子場や結晶との相互作用に至るまでの多岐にわたる物理現象を、原子・分子・光物理学における新たな手法や視点から実験研究することを目的としている。そのために、特に分子イオンの励起や脱励起過程の観測や低速原子分子反応過程の研究に適したコンパクトな静電型イオン蓄積リングを開発した。装置を液体ヘリウム温度にまで冷却し、振動回転状態を制御した冷却分子イオンの低エネルギー原子分子反応過程の研究を計画している。また、蓄積イオンの質量に制限が実質的でないという特徴も利用して、大型生体分子イオンやクラスターイオンさらには液滴の励起状態のダイナミクスや関与する反応のエネルギー依存性の知見を得ることが可能であると期待される。

これに加えて、新しい原子分子光物理学を開拓するために、レーザーを組み合わせた光と粒子ビームの衝突実験や、結晶周期場による高速重イオンに対する原子操作の研究にも取り組んでいる。極端紫外から X 線領域に至るまでのエネルギー領域における重イオンの分光や量子操作さらに極短時間領域のダイナミクスの探求をめざしている。

1. 極低温静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突（榎本，中野，久間，Menk，東）

1.1 極低温静電型イオン蓄積リングの開発



図1 RICE およびテーブル定盤上の電極群の写真

極低温静電型イオン蓄積リング(RIken Cryogenic Electrostatic Ring: RICE)の開発を引き続き行った。本装置は基礎科学研究課題「極限粒子ビームをもちいたエマージング科学領域の開拓研究」において、極低温分子ビームの生成を担う中核的装置であり、静電場を用いて極低温のリング内にイオンビームを周回蓄積し、蓄積分子イオンの振動回転準位を分光制御した上で、さらにイオン・中性衝突反応を探索することを狙いとしている。また、装置全体を冷却することで真空度も飛躍的に向上するため、従来の室温型リングに比べ、長時間のイオン蓄積が可能となる。

数年間の設計・製作を経て平成 25 年度には、RICE-Ring の冷却及び真空試験を行う段階に到達した。内部真空槽(inner vacuum chamber (IVC)) の温度は、冷却開始から 160 時間後に 4.7K に到達した。IVC 内部の真空度は、IVC に接続されている差動排気真空槽で測定された真空度から、 10^{-12} Pa 台であると評価された。このように当初目的としていた極低温と超高真空度を達成したと結論できる。

すべての建設作業は平成 26 年初頭に終了し、ECR イオン源から取り出された 15 keV Ne^+ イオンを用いてイオン蓄積試験を開始した。いくつかの修正改良を加えた後、平成 26 年 7 月、遂に数 10nA の強度のイオン蓄積に成功した。残留ガスとの中性生成粒子収量は、蓄積イオンを追跡しその寿命を評価するに最適である。実際、 10^{-9} Pa の真空度に相当する 20K の温度条件では、この手法が機能し数秒から数 10 秒の寿命を評価することができた。しかしながら 5K 以下の温度では、真空度が良すぎるために衝突過程が大幅に抑制される。その結果、もはや中性生成物を観測することが難しくなる。イオン蓄積時間は劇的に長くなったことは結論できるが、精密な評価のためには、検出手法のさらなる開発が必要であると言える。

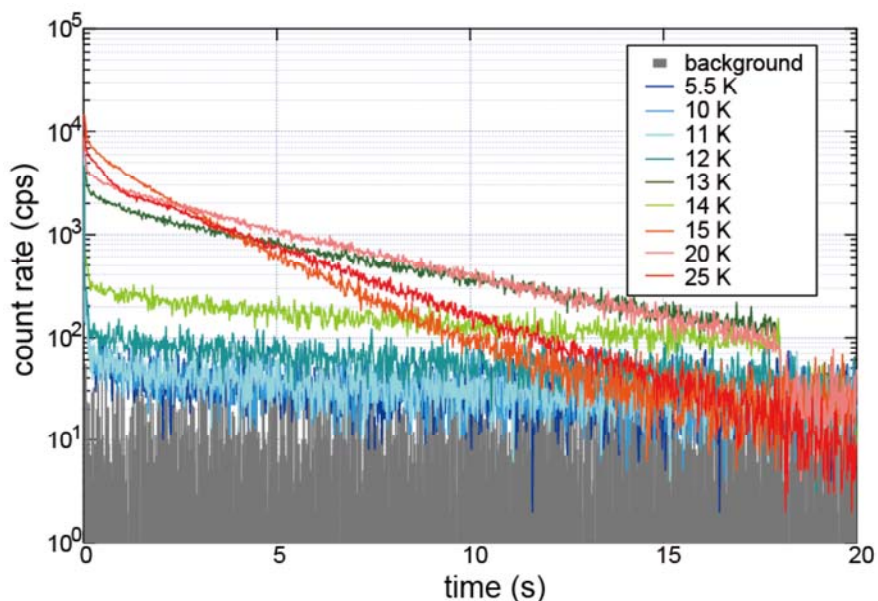


図2 中性粒子生成量の蓄積時間スペクトルの温度依存性

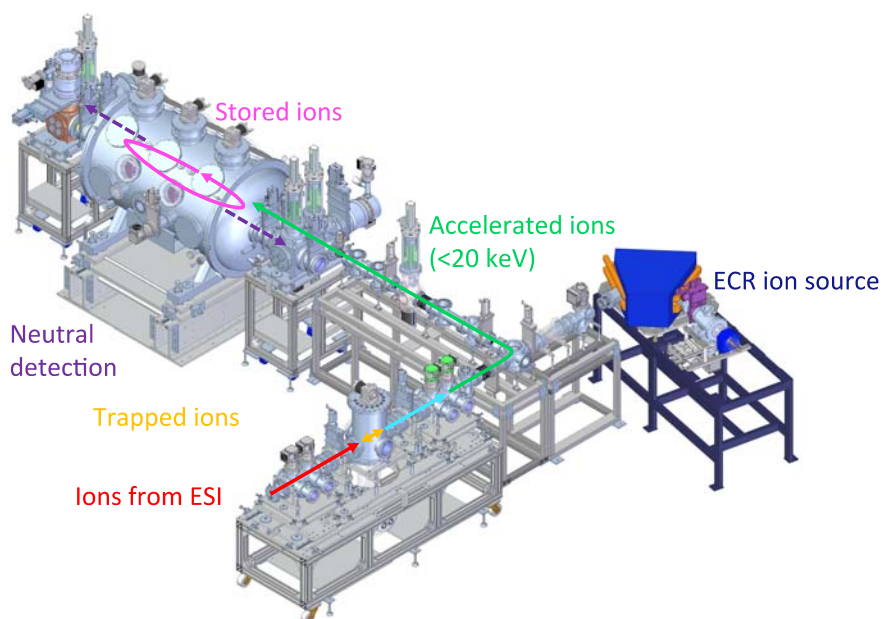


図3 イオン入射系および RICE-Ring の全体図

1.2 イオン入射システムの開発

RICE-Ring のコミッショニングのために 10 GHz ECR イオン源(Nanogun, Pantech Co.)を整備した。ECR イオン源から引き出された 15 keV Ne^+ イオンは、偏向磁石で質量選別した後、平行電極とスリットの組み合わせにより数 μs の時間幅のパルスビームとした。その後、これを二組の静電型 4 重極 3 連レンズ、水平・垂直ステアラー、さらにマイクロチャンネルプレート(MCP)と蛍光板で構成されるビームプロファイルモニターによって構成されるビームラインを通過させ RICE-Ring へ輸送した。

1.3 冷却分子イオン導入ライン

RICE-Ringへ導入する振動回転準位の冷却されたイオンを生成する装置を数年間にわたり製作してきた。これは、エレクトロスプレーイオン源(ESI)、4重極質量フィルター、低温RFイオントラップ、および加速装置によって構成され、バンチ化された冷却イオンをRICE-Ringに導入することを目的としている。大型分子イオンはESIイオン源によって生成され、加熱キャピラリーを通過することで分離される。さらに8重極イオンガイドによって輸送されたのち、4重極質量フィルターで質量分析される。その後、イオンはGM冷却器の4K 2段ステージヘッドに取り付けられた低温イオントラップに導入される。蓄積されたイオンは、冷却電極に囲まれた電極群に囲まれた環境下でHeバッファガスとの衝突によって冷却される。現状では、水和メチレンブルー正イオン $MB^+(H_2O)_n$ ($n \leq 90$) および水和ヨウ化セシウム正負イオン $CsI^{\pm}(H_2O)_n$ ($n \leq 70$) という2種類の分子イオンを対象とし、冷却捕獲することに成功している。

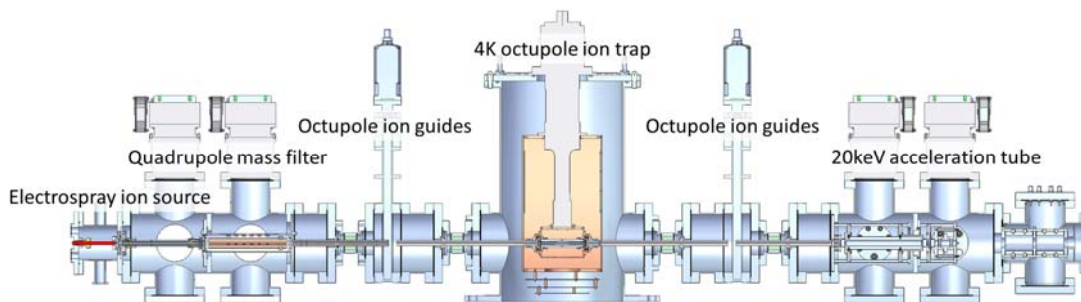


図4 4K イオントラップおよび分子イオン入射システム

次の段階は、冷却イオンを引き出し、パルス高電圧を加えることによって20keVの最終運動エネルギーにまで加速し、リングへ導入することである。これは、イオンバンチが加速装置に到達した直後に早い立ち上がりで加速装置を高電圧に上昇させることで達成される。8重極イオントラップからの高速イオン引き出しのために、電極を追加した改良型トラップの設計シミュレーションを行った。数10 μ sの短イオンバンチを作ることが可能であり、これをさらに加速することが期待されている。改良イオントラップおよび加速装置は現在組立作業中であり、引き続き動作確認が行われる予定である。

1.4 中性ビームライン

RICE-Ringの特徴を活かした実験計画の中に、新しい方式のイオン・中性衝突実験がある。この研究は低エネルギーイオン分子反応のダイナミクスを探求することを目的とし、衝突エネルギーや分子内部温度依存性を調べる。実験は、リング中に蓄積された分子イオンビームと中性ビームを交流衝突させることで行う。

中性ビームはセシウムスパッターイオン源で作られた負イオンビームをレーザー誘起光脱離することで作られる。導入したSNICS II (National Electrostatics Co.)イオン源は、80%エミッタンスで6-8 π mmrad(MeV)^{1/2}というダイバージェンスで、100 μ A という大強度の様々な種類の負イオンを作り出すことが可能である。現状の引き出しレンズ系の最大引き出し電圧は30kVである。イオン源は高圧電源とともに、インターロック機能を備えた30kVの高電圧ケージ中に製作された。これらは絶縁光ファイバーを通じてPCによる遠隔操作で運転される。

まず、負イオンビームラインのためのテストビームラインを建設した。これは、空冷偏向磁石(50V-6A, 500mT)、XYスリット、4重極3連電極、回転式ワイヤービームモニター(National Electrostatics Co., BPM80)、ビームコレクター、およびファラデーカップにより構成される。

磁石のポールピースは250mmの偏向半径、60度の偏向角度を持つように設計され、 $\Delta m/m > 100$ の質量分解能をもつ。テストビームラインにおける10keV C⁻イオンビームのイオン源からビームライン末端部までの輸送をすでに確認しているが、動作パラメーターの最適化が現在進行中である。

負イオンビームの光脱離に関しては、特注808 nm CWダイオードレーザーを設計し、平成26年末に完成した。このレーザーは最大出力5kWの積層レーザーダイオードアレーで構成され、fast/slow軸方向にそれぞれ0.5/10度の角度拡がりをもつ。必要とする電力、冷却水といったインフラ整備も終了している。レーザー光はARコートされたガラス窓から長方形の真空チェンバーへ導入され、負イオンを光脱離より中性化する。真空チェンバーの設計も終了しており平成26年度内に完成予定である。

次の段階は、外部キャビティをチェンバー内に設置してレーザー強度の実効強度を増大させること

である。キャビティのための光学計算が軌跡追跡ソフトウェアを用いて進行中である。

1.5.1.6 K 動作超伝導トンネル接合 (STJ) 検出器

静電型イオン蓄積リングにおける周回イオンの反応や崩壊は、通常生成中性粒子を装置直線部の延長上に設置された検出器によって観測することによって調べられる。生成中性粒子は 10 keV 程度の蓄積イオンとほぼ等速であり、検出器として MCP が用いられている。MCP には検出時間情報は得られるものの、入射粒子のエネルギー情報が得られないという欠点があるため、様々な解離生成物を含む生成中性粒子の種類を同定することが困難である。そこで 10 keV 程度のエネルギー領域で十分なエネルギー分解能が得られる検出器の導入を目指して、RICE-Ring 実験専用の超伝導トンネル接合(STJ)検出器の開発を開始した。

STJ 検出器は、超伝導体転移温度 T_c の 1/10 程度の温度 (~0.3K) で動作させることが主流であり、 ^3He クライオスタットが必要であった。我々は STJ 素子を改良し、液体 ^4He のポンピングにより達成可能な温度でも、0.3K で動作させた時と同程度のエネルギー分解能を備えた超伝導検出器の開発を目指した。

本研究では ECR イオン源から引き出された 15q keV Ne^{q+} ($q=1, 2, 3$) イオンを、 $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ の大きさの STJ 検出器に入射し、液体 ^4He のポンピングによって達成された 1.6 K の温度条件下で測定を行い、分解能の各種パラメーター依存性を調べることにより最適動作条件を探した。分解能に影響を与える要因として、STJ 素子に印加するバイアス電流や STJ 素子に対し垂直に与える磁場の大きさなどがある。その結果、 15keV Ne^+ に対して $\Delta E/E=15\text{-}20\%$ 程度の分解能を得ることに成功したが、動作条件が不安定であるため、より安定した動作条件を探す必要がある。

1.6 超流動ヘリウム液滴を用いた 0.4 K 分子イオンダイナミクスの探索

ヘリウム液滴は液体ヘリウムの巨大クラスターであり、その温度は 0.4 K である。この液滴内に分子を捕捉することで、分子の振動・回転エネルギーを 0.4 K まで瞬間的に冷却することが可能である。また、 ^4He で構成されるヘリウム液滴は超流動状態にあるため、捕捉分子の回転運動や内部エネルギー緩和過程に対して超流動特有の応答を示す。これまで主に中性原子・分子種に適用されてきたこのヘリウム液滴を、様々な分子イオンに応用し、イオンを捕捉することでヘリウム液滴自身の並進速度が制御可能になることに着目し、RICE-Ring への導入による長時間ダイナミクスの追跡を計画した。図 5 に実験スキームの概略を示す。平成 26 年度は、液滴中イオンの高効率生成に向けた装置開発に着手した。

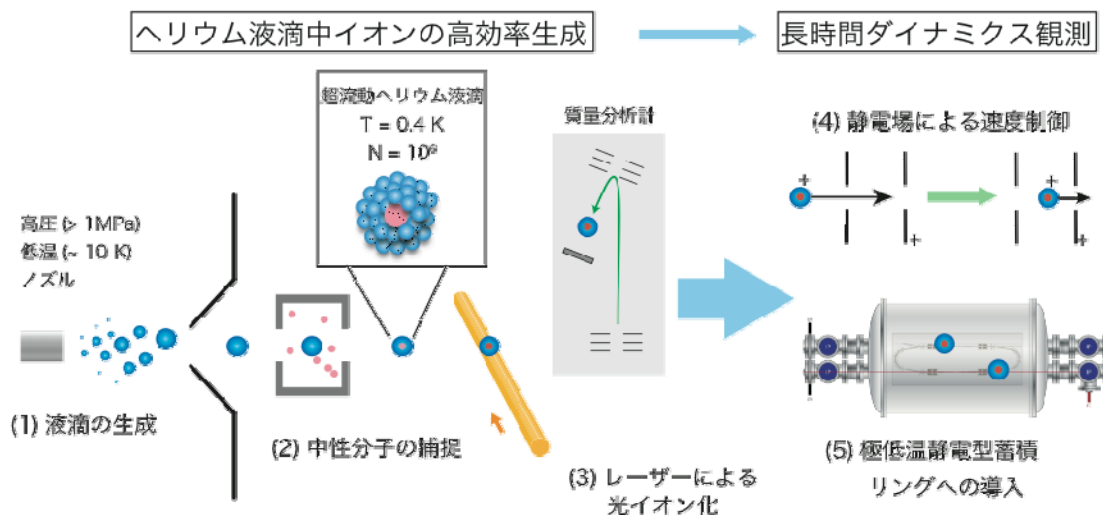


図 5 ヘリウム液滴を用いた極低温イオンダイナミクス探索のための実験スキーム

ヘリウム液滴ビームは、高圧 (> 1 MPa) 低温 (< 20 K) ノズルから真空中へのヘリウムガス噴出により生成される。開口径 ~ 5 ミクロンノズルから真空中に噴出されたヘリウムガスは、断熱膨張による温度低下に伴い凝集し、温度数ケルビンの巨大液体クラスターとなる。その後クラスターからのヘリウム原子の気化熱を利用して、平衡温度である 0.4 K に到達する。ヘリウム液滴ビームは、その後のイオン生成のためにスキマーで切り出される。

平成 26 年度は液滴装置の設計・製作を行った。ノズルからは大量のガスが噴出されるため、高排気量の排気システムを備えるチャンバーを製作した。ガス量 $0.01\ \text{Pa}\cdot\text{m}^3/\text{s}$ に対しても、液滴生成に必要な $10^2\ \text{Pa}$ 以下の圧力を実現することが可能である。またノズルの冷却には、長時間連続運用に向けて、

GM 型閉回路電気冷凍機を用いる。ヘリウム液滴の生成確認および液滴サイズ分布の測定には、ビーム下流に配する飛行時間型質量分析計を用いる予定である。

さらに、ヘリウム液滴中に分子イオンを準備するための手法の検討を行った。1) 液滴へ中性分子捕捉と光イオン化：中性分子は衝突により容易にヘリウム液滴内部へ捕捉される。衝突領域の圧力制御により、捕捉効率が最適化できる利点がある。0.4K まで冷却された捕捉分子のイオン化には、ナノ秒レーザーによる共鳴多光子イオン化法を用いる。ヘリウム媒質は極紫外に渡る幅広い光周波数領域に対して透明なため、気相同様の光イオン化過程が期待される。2) 液滴へのイオンの直接捕捉：十分な高密度の分子イオンを準備できれば、イオンに対しても衝突による液滴への捕捉が可能である。質量選別を経てイオントラップに蓄積されたイオンとの衝突により、液滴中の 0.4 K 冷却イオンを生成する。

今後は 1)の手法を用いたイオン生成法を実現するための装置開発を行い、まず中性分子の捕捉条件を最適化する。その後の光イオン化に必要な波長可変ナノ秒レーザーは既に設置済みである。

2. 常温運転静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突 (東)

2.1 直鎖炭化水素負イオンの寿命・分光測定

星間空間において観測される負分子イオンの電子脱離過程や放射性脱励起過程を探求するために、これまで、直鎖状炭素クラスターイオンや炭化水素イオンを首都大学東京に設置した静電型イオン蓄積リング中に常温の環境下で蓄積し、電子脱離による寿命を測定してきた。この数年間は、特に C_5^- 、 C_6^- さらには C_6H^- イオンを対象として実験を行ってきた。その結果、これら孤立負分子イオンのミリ秒以上の遅い冷却過程の全体像が明確に把握できるようになった。大型の分子負イオンは一般に生成時、高温すなわち高い内部エネルギーを有する高振動状態にある。分子負イオンは、電子親和力を超えるような内部エネルギーを持つと電子脱離する。その過程は熱統計的に遅延過程を経て進行し、内部エネルギーの関数として速度が決定されることが知られている(thermionic emission)。すなわち、高い内部エネルギーを持つほど速く、低いほど遅く電子脱離する。よってイオンの電子脱離過程の時間分解挙動を観測することで、内部エネルギーの情報を得ることが可能である。

最近の最も大きな発見は、逆内部転換過程(inverse internal conversion: IIC)を経て起こる再起蛍光による特徴的な冷却過程である。一般的に、イオン源や可視レーザー照射によって作られた電子励起状態は、内部転換(internal conversion: IC)により電子基底かつ振動励起状態にある準位へと移行する。分子イオンの冷却は、この振動準位間遷移に伴う赤外光の放出による。しかし、孤立イオンを真空中に長い時間保持すれば、IC の逆である IIC が起こり、電子励起準位にもどった後に可視光を放出、すなわち再起蛍光によって冷却され、大幅にエネルギーを失う。この過程は理論的には何十年も前から予測されていたのにも関わらず、実験上の困難から明瞭には観測されてこなかった。

静電型イオンリングやトラップの進歩により、この過程が観測可能となり、平成 26 年に我々のグループとフランス・リヨン大学のグループがほぼ同時に、 C_6^- およびアントラセン正イオンを対象としてこの過程を観測したことを報告した。これに引き続きイスラエル・ワイツマン研究所のグループも C_6^- を対象と驚観測を報告している。いずれも、中性収量の測定を通して、赤外光による冷却では期待できない早い冷却過程を見出した。

我々は最近、波長可変 OPO レーザーを導入して C_4^- に関してもこの研究を展開した。その結果、イオンの初期温度に依存した冷却時間の変化を観測し、再起蛍光に関する詳細な情報を引き出すことに成功した。ms 以上の遅いダイナミクスにおいては、従来実験手法の欠如から理解が充分でなかった重要な過程が我々のイオン蓄積リングで研究可能であることを証明した。このアプローチは引き続き理研において開発された RICE-Ring においてこそますます重要となると期待される。

3 先端光源を用いた新しい原子分子光物理学の開拓 (Zhang, 久間, 東)

3.1 ポジトロニウム負イオン(Ps^-)の共鳴光解離

ポジトロニウム負イオン(Ps^-)は、2つの電子と1個の陽電子から構成される束縛状態でありクーロン力で結びついたもっとも単純な3体系のひとつである。そのダイナミクスや分光は基礎的な原子物理学的観点から魅力ある研究対象である。最近、東京理科大学の長嶋らは Na を吸着させた W 表面に低速陽電子を入射することによる効率的な Ps^- イオンの生成法を見出した。これにより、 Ps^- の分光という新しい領域が切り開かれた。

我々は波長可変色素レーザーを持ち込むことによって形状共鳴を観測することを狙って、KEK 低速陽電子施設における長嶋グループの実験に参加し、 Ps^- ($n=2$) しきい値近傍における Ps^- の 1 光子レーザー分光に取り組んだ。実験は、パルス幅 10ns、繰り返し 50Hz のパルス状低速陽電子ビームを利用した。 Ps^- のバンチは Na を吸着させた W 表面陽電子ビームを打ち込むことで生成した。これらは、その後、

静電的に加速され、電場フリーの領域でプローブ光と直交する配置で衝突させた。光源はパルス幅 5ns、繰り返し 10Hz のクマリンを使った色素レーザーであり、Q スイッチ Nd:YAG laser の第 3 高調波によってポンプされている。226 nm から 231 nm の紫外領域のプローブ光は BBO 結晶を用いた波長変換によって生成した。光解離した後の Ps 原子は MCP で検出され、その収量の波長依存性を測定した。その結果、Ps の 1 光子光脱離共鳴プロファイルを明瞭に観測することに成功した。Ps 原子収量は Ps (n=2) しきい値 (5.43 eV) から立ち上がりピークを形成する。これは 1P_0 状態の形状共鳴の理論計算結果と良い一致を見せた。

3.2 飛行時間型光電子分光器を用いた強光子場中での光イオン化過程

強光子場中で起こる原子分子過程を研究する目的で、飛行時間型光電子分光器(e-TOF)を用いて、 $1.9 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ にいたる高強度 0.8 μm の円偏光レーザー電場における、Xe、Kr および Ar の光電子エネルギースペクトルを以前測定した。ここでは直接イオン化過程がその生成機構の所要な役割を果たすと考えられる。実験は、Ti:sapphire レーザーシステム(パルス幅 25fs、繰り返し 1kHz、円偏光)から生成した 800nm の基本波を利用し、生成レーザービームを $f=300\text{mm}$ のレンズで集光した。標的ガスは標的チェンバーに超音速ジェットとして導入し、レーザーパルスと直交させた。その結果入射光の電場ベクトル方向に放出される光電子を電場フリーの条件下で MCP によって検出した。最終的に、レーザーシステムのマスタークロックによって供給されるレーザーパルスと電子到着時刻との時間差は、デジタルオシロスコープによって直接記録した。実験の結果、 $9.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ を超える強度では、高エネルギー領域に肩や裾を伴う非対称な構造が明瞭に観測された。

平成 26 年度は、この観測結果を作り出す物理機構を理論的に解明するため、電通大の森下やロシア・クルチャトフ研究所の Tolstikhin と共同研究を行った。

断熱近似理論に基づく解析から、逐次多重イオン化が重要な役割を果たすことが明らかになった。ただし、Xe や Kr に見られる高エネルギー側の詳細な構造は、単純な高強度電場によるトンネルイオン化のモデルでは説明できなかった。

そこで、より詳細にイオン化機構を探求するため、MCP、蛍光板、CCD カメラで構成される velocity map imaging (VMI)系を新しく構築した。これは、生成粒子の TOF と位置情報を用いて、250eV に至る高エネルギーの電子、および同時に生成されるイオンを測定できるように設計されている。生成電子とイオンの運動量分布は個別に再構成され、多重光イオン化過程の機構のより詳細な情報を提供することが期待される。

4 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起 (中野, 東)

単結晶中を通過する高速イオンは、結晶周期原子面を横切の際に周期的振動電場を感じる。この振動数が入射イオンの原子準位エネルギー差と一致するとき共鳴的な励起が期待され、この現象はコヒーレント共鳴励起(RCE)と呼ばれている。高速重イオンは、X 線領域での RCE を可能とした。我々は、HIMAC (放射線医学総合研究所重イオン加速器)やドイツ GSI 重イオン研究所において供給される核子あたり 100-400 MeV の多価重イオンをシリコン結晶に通過させ、入射イオン方向に対する結晶の角度を走査しながら、出射イオンの電荷分布、イオンから放出される 2 次電子、さらに脱励起 X 線を観測することによって X 線領域の原子遷移制御を目的として実験研究を行ってきた。

特に、原子面配列の周期性を利用する 3 次元 RCE(3D-RCE)が、RCE 手法の様々な応用の道を切り開いた。イオンが結晶中を速度 v で進む際、遷移エネルギー E_{trans} の共鳴条件は $E_{\text{trans}} = \hbar \mathbf{g} \cdot \mathbf{v}$ と記述される。ここで \hbar は Planck 定数、 \mathbf{g} はローレンツ因子、また \mathbf{G} は対応する原子面を指定する逆格子ベクトルを表している。逆格子ベクトル \mathbf{G} はミラー指数 (k, l, m) で指定される。3D-RCE の共鳴条件は入射イオンの原子面に対するふたつの独立した角度 θ および ϕ を走査することで得られる。イオンビーム方向に対して結晶を傾けることは、結晶電場の振動周波数を走査することに相当する。

4.1 高励起状態への共鳴励起

X 線領域における原子準位における分布制御の一例として、2 段階共鳴、すなわちラダー型 2 重共鳴によって He-like Ar $^{16+}$ の高励起状態 ($n=3$) を生成できることを、数年にわたる努力の末、遂に確認した。

HIMAC において、389.80 MeV/u H-like Ar $^{17+}$ イオンを 1 μm 厚の Si 結晶中を通過させることにより、 $(k, l, m)=(1, 1, 0)$ で指定される原子面配列を使って、1s 基底状態電子を $2p_{3/2}$ 準位へ励起した。引き続き $(k, l, m)=(0, 8, 0)$ で指定される原子面配列で $2p_{3/2}$ 準位からさらに 3s、3d 準位へと励起した。

た。この結晶配置では後者の結晶回転角 θ に対する共鳴幅が、その高次のミラー指数を反映して非常に狭くなる。図 6 に示すように、 $n=2$ 準位からの Ly-alpha X 線の収量における共鳴プロファイルでは、幅

広のピークの中心部分に、鋭く深い窪み構造を観測した。幅広の成分は $1s \rightarrow 2p_{3/2}$ 共鳴遷移に由来し、窪みは $2p_{3/2} \rightarrow 3s, 3d$ 共鳴遷移による励起 $2p_{3/2}$ 準位の減少に起因している。この特徴的な挙動は、ラダー型 2 重共鳴を確認するものであり、密度行列計算による結果とも良い一致を見せた。

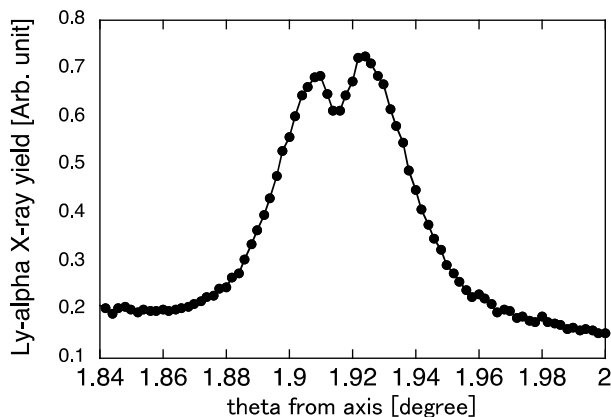


図 6 3D-RCE における H-like Ar¹⁷⁺ イオンのラダー型 2 重共鳴($1s \rightarrow 2p \rightarrow 3s, 3d$)。脱励起 X 線収量による共鳴プロファイルを示す。

4.2 H-like Fe イオンから放出される X 線の放出方向異方性

3D-RCE の手法を使って特定の励起状態への遷移が可能である。特に、結晶原子面の特定の配列を選ぶことで 3D-RCE の擬似光子の偏光方向を制御できる。偏極水素様重イオンから放出される脱励起 X 線異方性は興味深く、 $2p_{1/2}$ 準位からの脱励起 X 線は等方的である一方で、 $2p_{3/2}$ 準位からの脱励起 X 線は ls 相互作用を通じた軌道角運動量の影響を受けて異方的となる。従来、適切な直線偏光 X 線光源がなかったために、この挙動は実験的には調べるのが困難であった。

HIMACにおいて、我々は $2.5\mu\text{m}$ 厚の Si 結晶中に 460 MeV/u の H-like Fe²⁵⁺ イオンを通過させ、イオンから水平方向および鉛直方向にそれぞれ放出される Ly- α X 線を測定した。特に 3D-RCE においてミラー指数 (k, l, m) で指定される結晶面の m を変化させることによりその偏光依存性を観測した。

図 7 に典型例を示すように、 $j=1/2$ 準位からでは等方的、 $j=3/2$ 準位からでは異方的である X 線放出が観測され、定量的にも理論と良い一致が得られた。

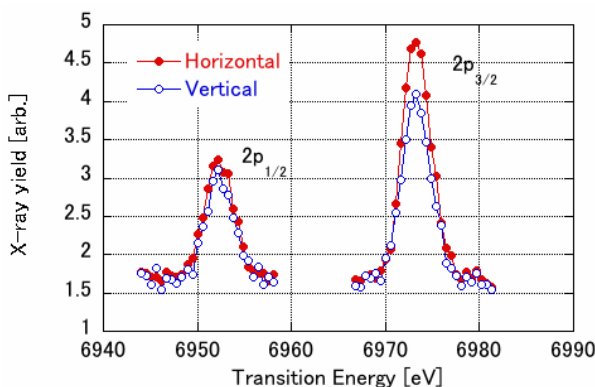


図 7 (2,-1,1) 原子面配列によって 3D-RCE 励起された H-like Fe²⁵⁺ イオンの $2p_{1/2}$ および $2p_{3/2}$ 準位から放出された X 線の共鳴スペクトル。水平方向及び鉛直方向に放出された X 線収量を比較している。

4.3 冷却 U⁸⁹⁺ ビームのコヒーレント共鳴励起

もう一つの側面として、RCE は X 線領域の分光法の新しい手法として期待されている。我々は強電磁場中の QED 検証を目指して、ドイツ GSI にて多価重イオンの RCE 実験を開始し、平成 21 年に初めて 190 MeV/u Li-like U⁸⁹⁺ イオンの $2s-2p_{3/2}$ 遷移 (4.5 keV) の観測に成功した。観測された共鳴幅、すなわち RCE による分光分解能は 4.4 eV であり、主にビームの運動量広がり $\Delta P/P$ 、標的内部でのエネルギー

損失 ΔE 、ビーム角度広がり $\Delta\theta$ により制限されていることが分かった。

今回、平成 26 年に行った実験において下記 3 点の改善を行ったところ、共鳴幅が 1.5 eV 以下となり分解能が大幅に向上した。

- 1) イオン蓄積リング ESR を利用した、ビームの電子冷却 ($\Delta P/P$, $\Delta\theta$ の減少)
- 2) 新たな診断系導入によるビーム輸送の最適化 ($\Delta\theta$ の減少)
- 3) 標的結晶厚を 1.0 μm , 2.5 μm へ変更 (ΔE の減少)

さらに、本実験で得られた共鳴プロファイルはほぼ純粋なローレンツ型であり、実験的な不均一幅を共鳴過程そのものの均一幅に比べて十分小さく抑えることに成功した。

Principal Investigator

東 俊行 Toshiyuki Azuma

Research Staff

小林 峰 Takane Kobayashi

中野 祐司 Yuji Nakano

久間 晋 Susumu Kuma

Pengju ZHANG

Sebastian MENK

Students

Paul BERTIER

木崎達也 Tatsuya Kizaki

小林樹来 Tatsuki Kobayashi

Assistant and Part-timer

高野 由加 Yuka Takano

佐藤 利恵 Rie Sato

Visiting Members

粟屋 容子 Yohko Awaya

渡部 力 Tsutomu Watanabe

田沼 肇 Hajime Tanuma

城丸 春夫 Haruo Shiromaru

間嶋 拓也 Takuya Majima

松本 淳 Jun Matsumoto

水野 智也 Tomoya Mizuno

丑田 公規 Kiminori Ushida

馬場 守 Mamoru Baba

上田 卓典 Takunori Ueda

Atomic, Molecular & Optical Physics Laboratory
AZUMA, Toshiyuki (D. Eng.)



Key Sentence :

1. Atomic, and molecular collisions using an electrostatic ion storage ring
2. Exploring atomic, molecular, and photonic physics utilizing the advanced photon sources
3. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions

Key Word :

atomic and molecular physics, atomic collision, ion storage ring, electrostatic ring, ion trap, isolated single molecule, cluster, droplet, merging collision, low-temperature reaction, excited ions, meta-stable ions, radiative cooling, chemical evolution in space, bio-molecular ion reaction, laser spectroscopy, ultra-short-pulsed intense laser, time-resolved spectroscopy, molecular alignment and orientation technique, coherent control, highly-charged ions, heavy ions, fast ions, channeling, resonant coherent excitation, Okorokov effect, multi-electron excitation, de-excitation x-ray, single crystal

Outline

We experimentally study wide-ranged physical processes; cold chemical reaction relevant to universe evolution, dynamics of large complex molecules, atom interaction with a ultra short-pulsed intense lasers and crystals, from new methods and view points of atomic, molecular and optical physics.

We constructed a compact electrostatic ion storage ring dedicated for investigating molecular collisions and dynamics. Low-energy collisions and reactions of cold molecular ions in the specific vibrational and rotational states prepared by the ring is our primary mission to be explored. Taking advantages that an electrostatic ring has no limitation of mass of stored ions, we expect that the excitation and de-excitation dynamics of large bio-molecular ions and cluster ions as well as energy-differential cross section of relevant collisions are revealed.

We have started a new project to perform merging experiments by combining atomic and molecular beams with an ultra-short pulsed intense laser. We have been also trying manipulation of high-energy heavy atomic ions by the crystal periodic fields. We explore fast dynamics in the ultra short time range, and spectroscopy and manipulation of heavy ions in the energy region from EUV to X-rays.

1. Atomic, and molecular collisions using a cryogenic electrostatic ion storage ring

1.1 Cryogenic electrostatic ion storage ring



Fig.1 Photo of RICE and its electrodes on the plate

We have developed a cryogenic electrostatic storage ring (RIKEN Cryogenic Electrostatic Ring: RICE), which will serve as a core apparatus for the production of a cold molecular ion beam in the Basic Science Interdisciplinary Research Project; Emerging Science Explored by Extreme Beam. The project aims to explore the quantum collision dynamics of the stored molecular ions in the specific vibrational and rotational states by the merging experiments with a beam of the neutral atoms. The cryogenic chamber will provide an extremely high vacuum condition, which offers a much longer storage of the ion beam compared to the room-temperature apparatuses. In 2013 after designing and construction for several years, we could reach the development stage of testing cooling and vacuum conditions of RICE-Ring. The temperature of the inner vacuum chamber (IVC) reached down to 4.7K from room temperature after 160 hours cooling. The vacuum in the IVC was monitored by the vacuum gauge at the differential pumping chamber, and evaluated to be in the order of 10^{-12} Pa. Thus, we concluded that we attained the targeted low temperature and high vacuum.

All of construction is over at the beginning of 2014, and ion storage test has started using 15 keV Ne^+ ions extracted from the ECR ion source. After several modifications, we finally succeeded in storage of the ions with the intensity of up to a few 10nA in July 2014. The yields of the neutral particle products due to the collision with residual gas are the most suitable observable to trace the stored ions and to evaluate the lifetime. Indeed in the temperature condition of around 20 K corresponding to the vacuum condition of around the order of 10^{-9} Pa, this scheme worked very well and we succeeded in evaluating the lifetime of several second to several tens seconds. However, at the temperature below 5K, due to the excellent good vacuum, this collision process is reduced to a large extent. As a result, it becomes difficult to observe the neutral products any more. We can safely conclude that the ion storage time becomes dramatically long, however for the precise evaluation, we need further development for the detection methods.

1.2 Ion

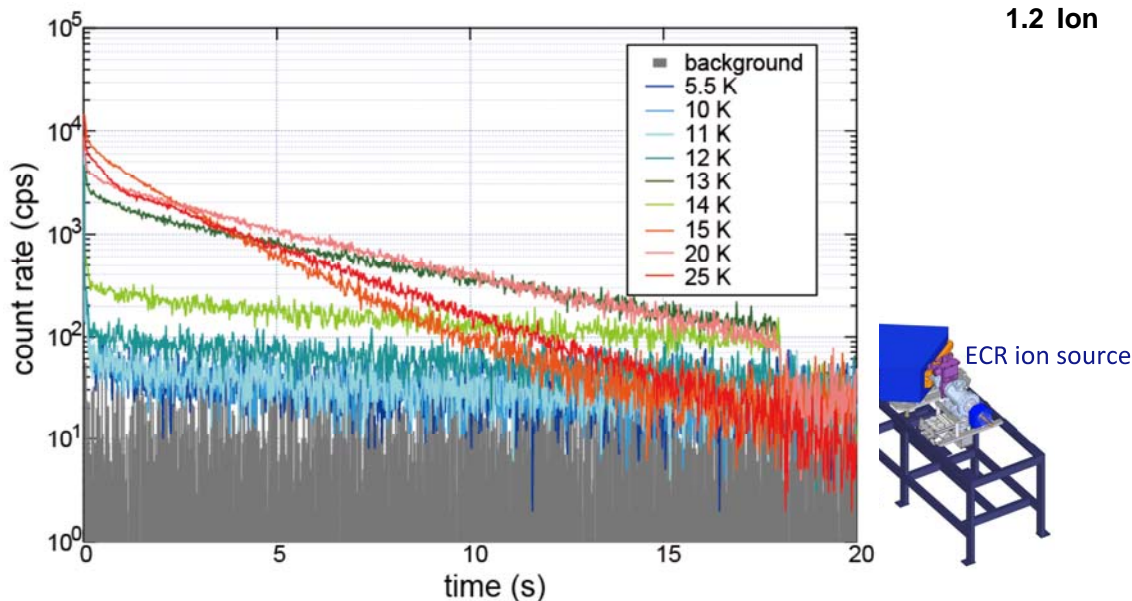


Fig.2 Temperature dependence of neutral product yields as a function of the storage time.

source and beam transport

Fig.3 The ion injection system and RICE-Ring

For commissioning of RICE-Ring, we prepared a 10 GHz ECR ion source (Nanogun, Pantechnik Co.). 15 keV Ne^+ ions extracted from the ECR ion source were mass selected by the bending magnet, chopped to a pulse of a few microsecond width by a combination of a parallel plate electrodes and a slit. Then, this pulsed beam was transported to the RICE-Ring through the beam line consisting of two sets of electrostatic quadruple triplet lenses, vertical and horizontal steerers and beam profile monitor (MCP and phosphor screen).

1.3 The cold molecular ion injection system

We also built a device to produce ro-vibrationally cold molecular ions for injection into the RICE-Ring. The device consists of an electrospray ion (ESI) source, a quadrupole mass filter, a cryogenic radiofrequency ion trap and an acceleration tube. We aim to inject a bunched beam of cold ions into the RICE-Ring. Large molecular ions are produced via the ESI source and can be disintegrated by passing them through a heated capillary. These molecular ions are guided by octupole radiofrequency fields and are mass-selected by the quadrupole mass filter. Then they are introduced into the cryogenic ion trap mounted on a 4K two-stage cold head of a GM cooler device. The stored ions are cooled by the He buffer gas collision under the environment surrounded by cold electrodes.

So far two molecular ion systems were mainly studied: positive methylene blue water clusters $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_n$ ($n \leq 90$) and positive and negative cesium iodide water clusters $\text{CsI}^\pm(\text{H}_2\text{O})_n$ ($n \leq 70$). We confirmed that they were successfully trapped and cooled down.

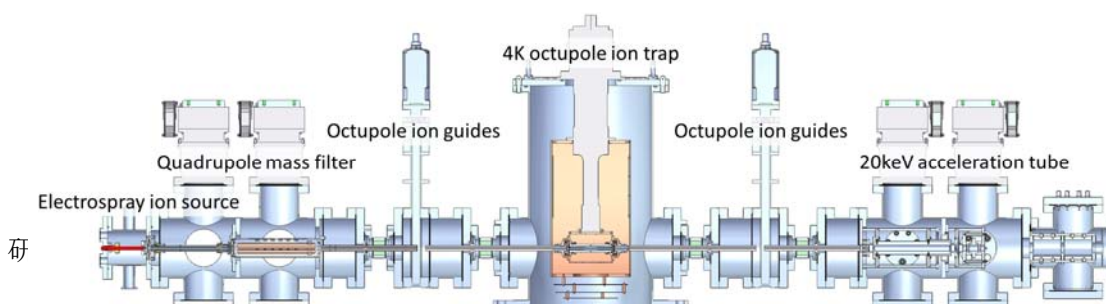


Fig.4 The molecular ion injection beam line with the 4K-pre-trap

As the next step, the cooled ions will be extracted and accelerated to the final kinetic energy of up to 20 keV in a pulse mode by the pulsed high-voltage application, and guided into the ring. This is accomplished by a high-voltage acceleration tube whose potential is quickly raised after the ion bunch has entered.

For the fast extraction of ions from the octupole ion trap, simulations for a modified trap design with additional electrodes were performed. Thus, short ion bunches of a few tens of microseconds can be achieved which can then be further accelerated in the high-voltage acceleration tube. Both, the trap modifications and the acceleration tube, are currently been assembled and will be taken into operation subsequently.

1.4 The neutral beam line

Taking the advantages of the RICE-Ring, a novel ion-neutral collision experiment is planned as one of the proposed projects. This study aims to investigate the dynamics of low-energy ion-molecule reactions and its dependence on the collision energy and molecular temperature. The experiment will be carried out by merging a neutral beam to the molecular ion beam stored in the ring.

The neutral beam will be produced by a laser photo-detachment of a negative ion beam produced by a Cesium sputter ion source. The ion source, SNICS II (National Electrostatics Corp.), produces a variety of negative ion beams with a high current up to $\sim 100 \mu\text{A}$ in the 80%-emittance of $6-8\pi \text{ mrad}(\text{MeV})^{1/2}$. The highest extraction voltage of the current lens-extractor assembly is 30kV. The ion source has been built up in an inter-locked 30-kV high-voltage cage with power supplies, which are remote-controllable from a PC through the insulated optical fibers. We have constructed a test beam line for the negative ion beam consisting of an air-cooled dipole magnet (50V-6A, 500mT), an XY-slit, a quadrupole triplet, a rotating-wire beam monitor (National Electrostatics Corp., BPM80), a beam collector and a Faraday cup. The pole piece of the magnet was designed to have a bending radius and angle of 250mm and 60 deg, leading to the mass resolution $\Delta m/m > 100$. A test beam transport was successful with a 10 keV C^- ion beam from the source to the end of the beam line. An optimization of the operation parameters for the source and beam transport is in progress.

For the photo-detachment of the negative ion beam, a customized 808-nm cw-diode laser has been designed and delivered in the end of 2014. The laser is a stacked laser diode array with a maximum output of 5 kW and the divergence of 0.5/10 degrees in the fast/slow axes. The installation of the power and water infrastructures for the laser has been completed. The laser light will be introduced into a square-shaped vacuum chamber through an AR-coated glass windows and neutralize the negative ion beam. Designing of the vacuum chamber was finished and it will be delivered within FY 2014. As a next step, an external cavity will be installed into the chamber to increase the effective intensity of the laser. An optical calculation for the cavity is under progress using the ray tracing software.

1.5 The superconducting tunnel junction (STJ) detector operating at 1.6K

Reaction and decays of the stored ions in the electrostatic ion storage ring are generally studied by observing the neutral product by the detector place at the extension of the straight section of the ring. The neutral product has the same velocity of the a few tens keV store ions, and often a micro channel plate (MCP) is adopted as the detector. The MCP provides the detection timing information, however, it has a disadvantage of the lack of energy information of the incident particles. Thus, assignment of a variety of the fragment from the reaction or decay is hard to achieve.

Aiming to introduce the detector equipped with enough energy resolution in the region of a few tens keV, we have started development of the superconducting tunnel junction (STJ) detector dedicated to the electrostatic ion storage ring.

In general a STJ detector requires low temperature of around 0.3 K attained by a ^3He cryostat. We focused development of the STJ detector with the equivalent energy resolution even it is operated under the temperature attained by liquid ^4He pumping.

The specially fabricated STJ detectors with the size of $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ were cooled down to 1.6K obtained by liquid ^4He pumping, and 15keV Ne^{q+} ($q=1, 2, 3$) ions extracted from the ECR ion source were injected to the STJ detector. By adjusting the bias current and the magnetic field applied perpendicular to the STJ detector to control the Josephson current, we attained the resolution of $\Delta E/E=15\text{-}20\%$ for 15keV Ne^+ in spite of the instabilities. We are now in progress to find the more stable operation.

1.6 Molecular ions in superfluid helium droplets: exploring molecular ion dynamics at 0.4 K

Helium droplets are large liquid clusters of helium at 0.4 K. They can easily capture various molecular species and instantly cool the rotational and vibrational energies of the molecules down to 0.4 K. Additionally, the droplets are in the superfluid state, thus showing characteristic responses to the rotational motion of the captured molecules and to the relaxation process of the internal energies. This new project has started in 2014, aiming application of this helium droplet method to a wide range of molecular ions. With ions inside, the translational motion of the droplets can be controlled by conventional methods for charged particles. This project will be then focused on long-time scale molecular ion dynamics in helium droplets introduced into the RICE-Ring. Figure 5 illustrates the experimental scheme of the project. As the first step, we have started the development of a helium droplet machine for high efficiency production of molecular ions at 0.4 K.

Helium droplets are produced as a molecular beam from a high-pressure ($> 1\text{ MPa}$), low-temperature ($< 20\text{ K}$) nozzle of helium. After the expansion from a nozzle with a typical orifice diameter of $5\ \mu\text{m}$, helium atoms start to aggregate together to form large liquid clusters. Finally their temperature is lowered to 0.4 K by evaporation of the surface atoms. The resulting helium droplet beam is skimmed for molecular ion production at the downstream.

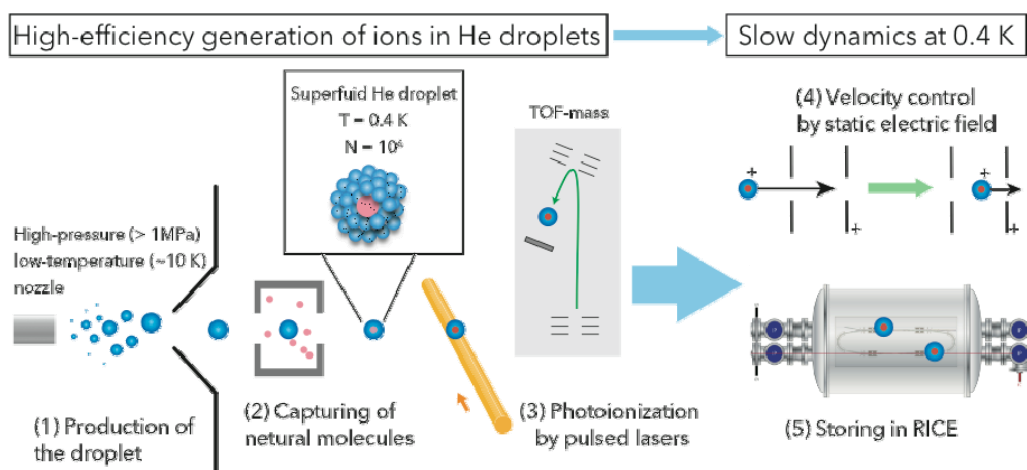


Fig.5 Experimental scheme for molecular ion dynamics in superfluid helium droplets at 0.4 K

We started the development of the droplet machine. Our machine is equipped with a vacuum system having a large pumping speed, which is required from high throughput of the nozzle: a pressure necessary for stable droplet production of $< 10^{-2}\text{ Pa}$ is achievable for a gas flow rate up to $0.01\text{ Pa}\cdot\text{m}^3/\text{s}$. A GM-type closed cycle electric cryocooler is used for long term continuous cooling of the nozzle. We plan to use a pre-developed, handmade TOF (Time-of-flight) mass spectrometer for the droplet beam characterization.

We have investigated the following two methods of molecular ion preparation in the

droplets. 1) Capture of neutral molecules and their photo-ionization: Capture of neutral species into the droplets has been already well established. By collision with the species, the droplets easily capture them inside. One of the advantages of this method is optimization of capture efficiency by the sample pressure. After capturing and cooling to 0.4 K, nano-second intense laser pulses are applied to the neutral molecules for high-efficiency, resonance multi-photon ionizations. 2) Direct capture of ions into the droplets: With high density of molecular ions, the above capture method for neutral species also works for the ions. One of the possible strategies for preparation of ions is utilizing an ion trap in combination with an RF mass filter for proper mass selection.

We plan to employ the first method and start the development of a capturing system for neutral molecules. Tunable nano-second laser systems for photo-ionization, an OPO and a dye laser systems, have been already set up in the laboratory.

2 Atomic, and molecular collisions using a room-temperature electrostatic ion storage ring

2.1 Lifetime measurement and spectroscopy of negative linear hydrocarbon ions and carbon cluster ions

In the last few years, we have intensively studied the electron detachment and radiative de-excitation processes of the negative small carbon cluster ions like C_5^- , C_6^- , and C_6H^- ions. We have measured the lifetime of these ions stored in a room-temperature ion storage ring in Tokyo Metropolitan University (TMU) by monitoring the time-dependent neutral product yield. We understood the whole dynamics of the delayed process of these isolated molecular ions in the time range slower than ms.

Large-sized negative molecular ions are generally in the hot temperature, namely in the high vibrational states with large inner energy. Electron detachment of negative ions takes place when they hold the internal energy above the electron affinity. It is known that this process proceeds statistically through the delayed process, and the rate is determined as a function of the internal energy, often termed as the thermionic emission; namely, the faster rate for the higher internal energy, and vice versa. Thereby, we can obtain the information of the internal energy by observing the time dependent behavior of the electron detachment of the ions.

One of the most significant finding during the last few years is a characteristic cooling process of "recurrent fluorescence" via the inverse internal conversion (IIC). Generally, electronically excited states prepared at the ion source or by visible laser irradiation proceed to the vibrationally excited, but electronically ground state through the internal conversion. The cooling of molecular ions is governed by IR photon emission between these vibrational levels. However, if we keep the isolated ions in vacuum for a long period, the inverse process of the IC, i.e., IIC are allowed, and the cooling process by emitting a visible photon from the electrically excited state (recurrent fluorescence) takes place, leading to decrease of the energy to a large extent. This process has been predicted theoretically for decades, however it has never been clearly confirmed in experiments due to the difficulty of the experimental approach.

The advent of the electrostatic ion storage ring or trap allowed us to observe this process. In 2014 almost simultaneously, our group and a French group at Lyon reported this process for C_6^- and anthracene cations, respectively, and an Israeli group at Weizmann institute followed these observations for C_6^- . These groups observed unexpected fast cooling process through the detection of the neutral decay product.

We recently extended this study to C_4^- ions via introducing a energy-tunable visible OPO laser. We clearly observed the change of the cooling time reflecting the initial temperature of the ions, and succeeded in extracting detailed information on the recurrent fluorescence.

3 Exploring a new Atomic, Molecular, and Photonic Physics utilizing the photon sources

3.1 Resonant photodetachment of the positronium negative ion (Ps^-)

The positronium negative ion (Ps^-), a bound state of two electrons and a positron, is one of the simplest three body systems bound through Coulomb forces. Its dynamics and spectroscopy is a fascinating subject from the viewpoint of fundamental atomic physics. Recently Nagashima et. al. (Science Univ. of Tokyo) found an efficient generation scheme of Ps^- ions by injection of slow positrons onto a Na-adsorbed W surface, and he has opened up the new field of optical measurements of Ps^- .

We joined the experiment by the Nagashima group at the KEK Slow Positron Facility by providing a tunable Dye laser system to observe the shape resonance. We tried a one-photon laser spectroscopy of the Ps^- near the Ps ($n=2$) threshold. Experiments were performed utilizing the pulsed slow positron beam (pulse width 10 ns, repetition 50 Hz). Ps^- bunches were generated by injecting the beam onto the Na-adsorbed W target. They were electrostatically accelerated and then vertically crossed with probe light in a field free region. The light source was the dye laser (pulse width 5 ns, repetition 10 Hz, Coumarin 460) pumped by a THG of Q-S.W. Nd:YAG laser. A probe light with a UV range from 226 nm to 231 nm was generated by wavelength conversion of the light output using a BBO crystal. The fragment Ps atoms were detected by a MCP and the yield was measured as a function of the wavelength. We succeeded in observing a clear one-photodetachment resonance profile of Ps^- . The fragment yield increased from the Ps ($n=2$) threshold (5.43 eV) and formed a peak in agreement with the result of a theoretical calculation of the shape resonance of 1P_0 symmetry.

3.2 Photoionization of rare gas systems in the intense circularly-polarized photon field

To study atomic/molecular ionization process under the intense photon field, utilizing a time of flight type photoelectron analyzer (e-TOF), we previously measured photoelectron energy spectra for Xe, Kr and Ar with circularly-polarized intense 0.8 μm laser fields up to 1.9×10^{15} W/cm^2 , where photoelectron originates dominantly from direct tunneling ionization.

The fundamental output (800nm) was generated from an amplified Ti:sapphire laser system (pulse width: 25~fs; repetition rate: 1~kHz; circular polarization lights). The laser beam was focused by an $f=300\text{mm}$ lens. Target gases were introduced to a target vacuum chamber as a supersonic jet, and were crossed with the intense laser pulses. Photoelectrons emitted along the electric vector of the incident light were detected by a MCP under the field free condition. The time difference between the laser pulse (provided by a master clock of the laser system) and the arrival time of the electron was directly recorded by a digital storage oscilloscope.

As the intensity increases above 9.6×10^{14} W/cm^2 , an asymmetric structure accompanying a shoulder and a tail in the high energy region becomes manifest.

In 2014, we tried to reveal the theoretical mechanism to provide the above observation by collaboration with the theoretical researchers, Morishita (The University of Electro - Communications) and Tolstikhin (Kurchatov Institute, Russia). Our theoretical analysis based on the adiabatic approach reveals that sequential multiple ionization plays a crucial role, however, the detailed structure in the high-energy region especially in Xe and Kr spectra challenges our understanding of strong field tunneling ionization.

Furthermore, in order to explore the underlying ionization mechanism in detail, a new velocity map imaging (VMI) system consisting of MCPs, phosphor screens, and CCD cameras together with electrodes to guide electron or ions has been constructed. This system is designed for measuring the high kinetic energy electron (up to 250 eV) and the corresponding ions simultaneously by the TOFs and the position information of the induced particles. The momentum distributions of the electrons and ions can be reconstructed separately, which will provide us more clear fingerprints for the new mechanisms in the multi photoionization process.

4. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions

Energetic ions passing through a crystal experience periodic oscillating fields by traversing

the periodic arrays of atomic planes. If one of the traversing frequency matches the electronic transition energy of the ions, they are resonantly excited: resonant coherent excitation (RCE). High-energy heavy ions enabled RCE in the x-ray energy region. We have been using 100-400MeV/u highly charged heavy ions supplied from the HIMAC heavy ion accelerator at the national institute of radiological sciences (NIRS), Japan and the GSI heavy ion research institute, Germany. To control of the population in the atomic levels in the x-ray region, we have measured the charge state distribution of the ions passing through a silicon crystal, secondary electron released from the ions, and de-excitation x-rays from the excited ions while we change the angle between the incident ion beam and the crystal.

In particular, three-dimensional RCE (3D-RCE) using the periodicity of the array of the atomic planes opened up a variety of application of RCE techniques. When the ions travel in a crystal at a velocity \mathbf{v} , the resonance condition for the transition energy E_{trans} is represented by $E_{\text{trans}} = h \mathbf{g} \cdot \mathbf{G} \cdot \mathbf{v}$, where h is Planck's constant, g is the Lorentz factor and \mathbf{G} represents the reciprocal lattice vector specifying the corresponding atomic planes. The reciprocal lattice vector \mathbf{G} is specified by the (k, l, m) Miller indices. The resonance condition of 3D-RCE is satisfied by tuning two independent angles of the incident ions with respect to the atomic plane, θ and ϕ , respectively. Tilting the crystal with respect to the ion beam corresponds to scanning the oscillating frequency of the crystal electric field.

4.1 Highly excited state formation by ladder-type double resonance

To prove the control of the population in the atomic levels in the x-ray region, we finally confirmed the production of the highly excited state ($n=3$) of He-like Ar^{16+} by a two-step resonance, that is, the ladder-type double resonance of 3D-RCE after a series of the experiments in the last few years.

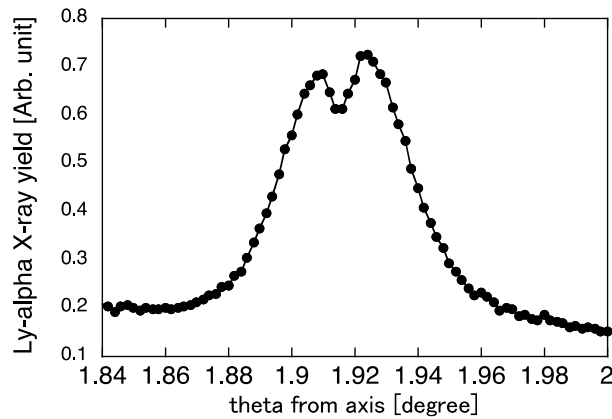


Fig.6 The ladder-type double 3D-RCE ($1s \rightarrow 2p \rightarrow 3s, 3d$) of H-like Ar^{17+} ions. The resonance profile of de-excitation x-ray yield.

At HIMAC, using 389.80 MeV/u H-like Ar^{17+} ions passing through a $1\mu\text{m}$ -thick Si single crystal, we excited the $1s$ ground state electron to $2p_{3/2}$ state by the array of the planes specified by $(k, l, m) = (1, 1, 0)$, and subsequently excited from $2p_{3/2}$ states to $3s, 3d$ states by $(k, l, m) = (0, 8, 0)$. In this configuration, the latter resonance has much narrower resonance width as a function of tilting θ angle, reflecting the Miller index. As shown in Fig.6, in the resonance profile of the yield of emitted Ly- α x-ray from the $n=2$ state, we clearly observed a sharp and deep dip structure in the center of the broad peak. The broad component is due to the $1s \rightarrow 2p_{3/2}$ transition, and the dip originates from the reduction of the excited $2p_{3/2}$ due

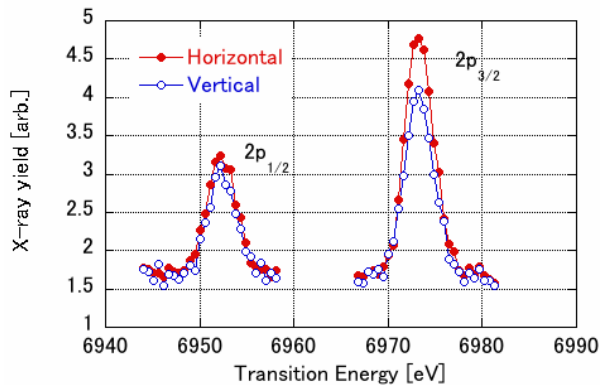


Fig. 7 The x-ray spectrum from the $2p_{1/2}$ and $2p_{3/2}$ states of H-like Fe^{25+} ions excited by the array of the (2,-1,1) planes for 3D-RCE. The comparison between the x-ray yields emitted in the horizontal and vertical directions are shown.

to the $2p_{3/2} \rightarrow 3s, 3d$ transitions. This characteristic feature confirms the ladder-type double resonance, and well agrees with a density matrix calculation.

4.2 Anisotropy in the direction of x-ray emission from H-like Fe ions

Using the 3D-RCE technique, we can excite the ions into the specific excited state. Polarization of the virtual photon of 3D-RCE is intuitively controlled by selecting the specific array of the crystal atomic planes. Anisotropy in the direction of de-excitation x-ray emitted from aligned H-like heavy ions is quite interesting; the x-ray emission from the $2p_{1/2}$ state is isotropic, and that from $2p_{3/2}$ state is anisotropic reflecting the orbital angular momentum through the ls interaction. Experimentally, this behavior has been not easy to access due to the lack of suitable linearly polarized x-ray lasers.

At HIMAC, we tried measurements of Ly- α x-rays emitted in the horizontal and vertical directions from 460 MeV/u H-like Fe^{25+} passing through a 2.5 μm -thick Si crystal, and studied the polarization dependence by changing m of the (k,l,m) atomic planes for 3D-RCE. As shown in Fig.7, as a typical example, the obtained results clearly demonstrates that the emission from $j=1/2$ states is isotropic, but that from $j=3/2$ is anisotropic, which agree with theoretical prediction quantitatively.

4.3 Resonant coherent excitation of the cold U^{89+} beam

Another aspect of RCE is expected to be a promising new approach to the high-precision spectroscopy in the x-ray regime. Aiming for the test of QED theory in the strong electric field, We started the RCE experiment at GSI, Germany in 2009, and succeeded in observation of $2s-2p_{3/2}$ transition (4.5 keV) of 190 MeV/u Li-like U^{89+} ions. The observed resonance width namely the resolution by RCE was 4.4 eV and mainly limited by momentum width of the incident beam $\Delta P/P$, energy loss of the beam inside the target ΔE , angular divergence of the beam $\Delta\theta$.

In 2014, we tried the experiment again, and we have achieved significant improvement of the resolution leading to the width less than 1.5eV by overcoming the following conditions.

- 1) reduction of $\Delta P/P$ of the beam by the electron cooling technique using the ion storage ring ESR.
- 2) reduction of the $\Delta\theta$ by optimizing the beam transport by introducing new diagnostic instruments.
- 3) Reduction of ΔE by adopting thinner (1 and 2.5 μm) targets.

The obtained resonance profile is the Lorentzian type, suggesting that the width originates only in the intrinsic property of the resonance process.

