

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進めている。また、蓄積イオンの質量に制限が実質的に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 (中野, 久間, 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。

RICE は極低温と超高真空度を同時に達成しており、内部真空槽(inner vacuum chamber (IVC)) の温度は、4.7K に到達し、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。平成 26 年 7 月、遂に数 10nA の強度のイオン蓄積に成功し、以降コミッションングを経て、実際の実験に利用が開始された。

長時間の寿命測定

環境温度 4K の極高真空下では、残留粒子との衝突により生成される中性粒子数がきわめて少ない。そのため、一定時間蓄積後にリングからビームを引き出し、強度測定を繰り返すことで、蓄積イオン数の時間変化を観測した。入射後 30 分に渡ってイオン数の減衰を観測し、10 分程度の時定数を得た。が、減衰曲線の振る舞いから、蓄積寿命は残留粒子との衝突ではなく、intra-beam Coulomb scattering 等の効果によるものであることが示唆される。

ビームのバンチ化

リング内でビームのバンチ構造を保つことにより、ショットキー検出器によるビーム強度の非破壊観測が可能になる。バンチング用キャビティに正弦波電圧をかけることで、蓄積ビームのバンチ化を行った。ピックアップ検出器に 5 次の楕円フィルターを実装することによってビームのバンチ構造を検出することに成功し、周波数スペクトルの時間変化から蓄積ビーム強度の減衰を観測した。これまで 5 ms 程度が限界であったが、バンチングを行うことにより、200 ms 程度までショットキー信号の検出が可能になった。今後、リングの極低温部に前置増幅器を設置することで検出感度を飛躍的に改善し、さらに長時間のビーム強度観測を実現する計画である。

レーザー合流実験

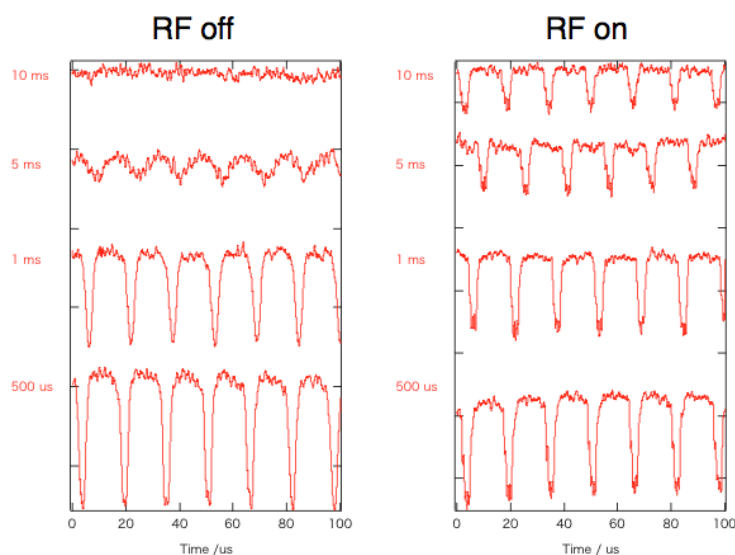


図 2 バンチング用 RF on/off 時のショットキー信号

分子イオンの前期解離レーザー分光実験に向けた実験セットアップを行い、OPO レーザー、色素レーザーを立ち上げた。ECR イオン源による分子イオン生成に取り組み、ガス圧、マイクロ波強度等に対する特性評価を行い、分子イオンの安定蓄積に成功した。また、分子の中性フラグメントと同軸上に進むレーザー光を分離するための検出装置を開発した。Al 製ミラーを中性フラグメントおよびレーザー進行軸に対して 45 度の角度に配置することにより、レーザー光は反射されてフォトダイオードによって検出される。一方で、中性粒子はミラーに衝突する際に 2 次電子を生成する。これを数 keV にまで加速した上でチャンネルトロンを使って検出する。検出器の動作確認を経て、ビームラインへの取り付けが完了

した。

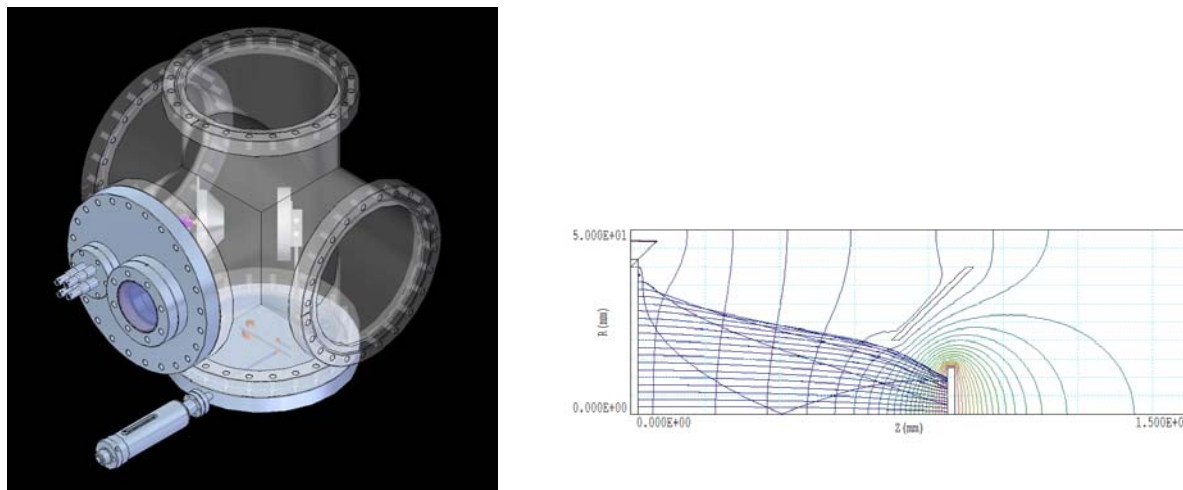


図3 レーザー光及び中性粒子検出器の外観(左)と検出器内の電位配置および加速2次電子の軌道シミュレーション(右)

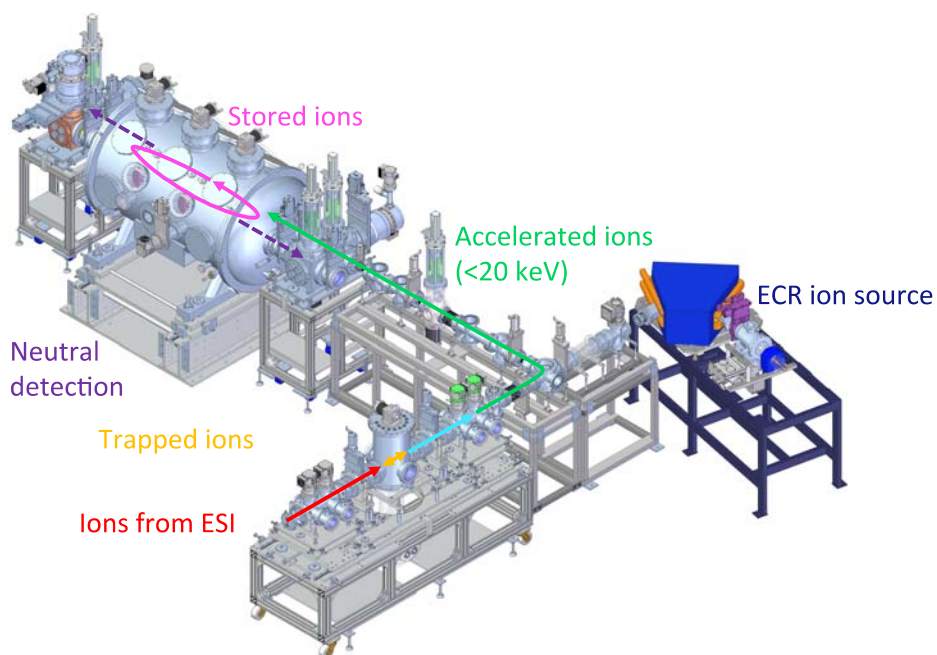


図4 イオン入射系および RICE-Ring の全体図

1.3 冷却分子イオン導入ライン

RICE-Ringへ導入する冷却イオン生成装置は、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8重極電極群に囲まれた環境下でHeバッファーガスとの衝突によって冷却される。

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、8重極の電極間にさらに補正電極を追加した改良型トラップを製作した。補正電極に注意深く設計したDC電圧を印加することで、イオン吐き出しに最適化したパルス勾配ポテンシャルを加えてやる。ここで、空間的に分布していたイオン群を空間的および時間的に一箇所に集束し、この場所にパルス加速電極を用意する。イオンバンチが加速電極位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によって、数10 μ s時間幅の10-20keVのパルス状イオンバンチを生成することに成功した。

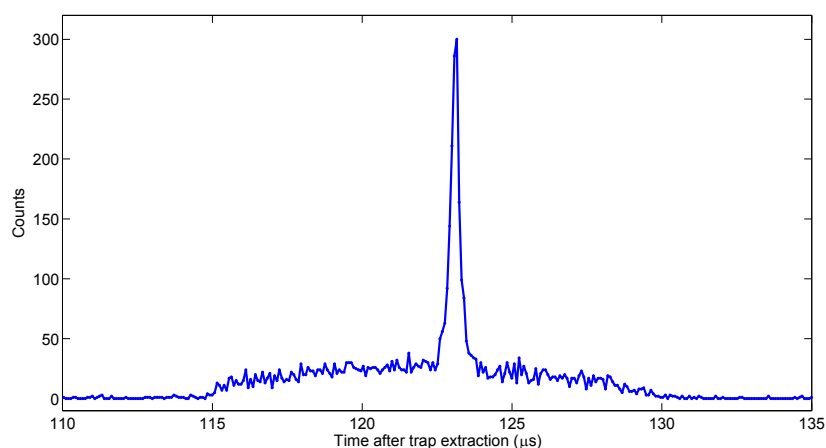


図5 イオントラップから引き出されたイオンにレーザーを照射した際の中性粒子 TOF スペクトル

加えて、加速後のイオンビームに対して、直角方向から10nsパルス波長可変OPOレーザーを導入して、イオンに照射、その下流側で電場によってイオンを排除し後に、生成された中性フラグメントを進行方向に設置したMCPで検出した。下図に、水和メチレンブルー正イオン $MB^+(H_2O)_n$ 分子イオンを対象とした一例で示すように、引き出し加速イオンバンチが、残留ガスとの衝突で生成した中性成分の中にレーザーによって生成された中性成分が明瞭に観測された。

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合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型イオン源で生成し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。最大30kVの高電圧プラットフォーム上の制御系を整備し、Csリザーバの温度とカソード電流値の常時モニタ、ロギングによる運転条件の最適化を行った。ビームラインの建設も平行して進行し、ビーム制御、診断コンポーネントを整備した。レーザーによる中性化を行う光脱離チャンバーの真空テスト、および合成石英レーザー窓の製作を行った。

また、半導体レーザーの立ち上げを行い、ダイオードアレイへの純水冷却水循環の機構、およびインターロックシステムを構築した。比抵抗 $2 \pm 1 \mu S/cm$ 、温度安定性 $\pm 0.1^\circ C$ で純水を循環することができている。また、レーザー光のプロファイル試験を行うため、シミュレーションソフトウェアコードZEMAXを用いて3種類の集光系を設計し、複数のシリンドリカルレンズからなるテストベンチを構成した。

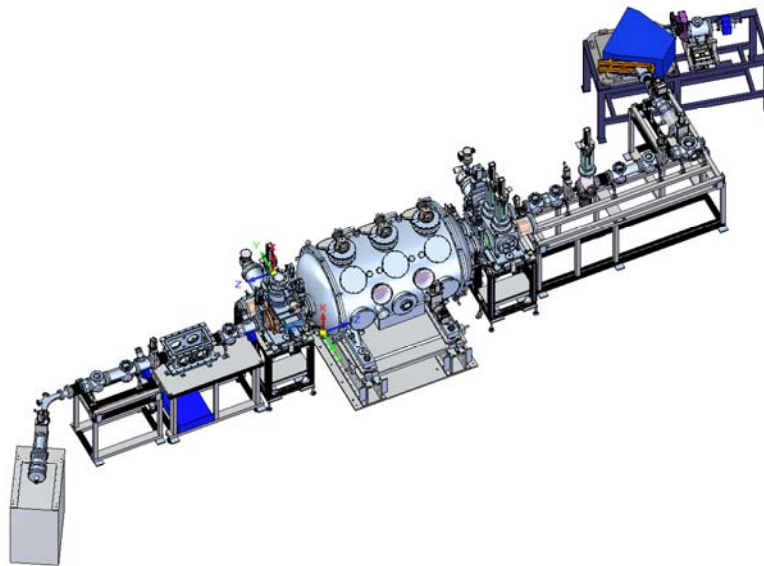


図 6 イオン・中性粒子ビーム合流衝突装置概略図

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、国立研究開発法人産業技術総合研究所と共同で RICE-Ring 実験専用の超伝導トンネル接合(STJ)検出器の開発を行っている。

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 $15q \text{ keV Ne}^{q+}$ ($q=1, 2, 3$) 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、 $\Delta E/E=15\text{-}20\%$ 程度の分解能を得ることに成功した。引き続き行った 0.3 K でのテスト測定から、熱雑音によるベースラインの揺れは抑制されるものの、両方の温度における分解能は同程度であることが判明した。この分解能で RICE-Ring から引き出された直線状炭素鎖 C_5 と C_6 の弁別が可能であるが、高分解能化を目指して検出素子及び測定系の改良を行っている。

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。

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。

本年度は昨年度に開始した装置開発に引き続き取り組み、装置基幹部分を完成させた。さらにヘリウム液滴ビームのパルス化を行った。市販の汎用ソレノイドバルブ (Parker, Series 99) をパルスノズル

として用いノズル先端形状を改良することで、繰り返し周波数 10 Hz のパルスヘリウム液滴ビームを得ることに成功した。検出には下流に設置した TOF (飛行時間型、Time-of-flight) 質量分析計を用いた。この TOF 分析計に対しては、検出効率向上を目指して電子衝撃イオン化部の改良を行った。その結果、これまでより一桁程度大きい電子電流を得ることに成功した。またに水分子を捕捉したパルス液滴ビーム TOF 分析計で観測することで、水分子由来のイオンに加えて、さらにヘリウム液滴由来の複数のヘリウム原子が結合したイオンを見出している。現在、紫外/可視/赤外レーザーを用いたヘリウム液滴内分子イオンの生成及びダイナミクス観測を目指し、準備を進めている。

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 炭素負イオンの寿命・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。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。これら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。負分子イオンは、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 (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。

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。過去の測定で C_5^- , C_7^- , C_6H^- は、この過程で冷却していることが我々の実験で明らかになった。一方で、赤外光放出過程だけでは説明できない早い冷却過程が存在することが C_4^- , C_6^- において発見された。

これは、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。 C_4^- では波長可変 OP レーザーを導入して、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。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。

ただし、これらの結果は、いずれも電子脱離の結果生成される中性粒子の収量を通して、早い冷却過程を観測したものであり、ある意味間接的な観測である。そこで我々は、周回中の C_6^- から放出される再起蛍光を光電子増倍管とレンズシステムを組み合わせることによって直接観測した。観測したのは、 $C^2\Pi_g^+$ state (2.04 eV) 電子励起準位から基底準位へ脱励起する際に放出される 607nm の可視光であり、バンドパスフィルターによって波長選択した。また通常の蛍光と区別するために C_6^- の周回と同期して検出光の時間変化を測定した。すなわち、蛍光の場合に比べて明らかに長い数 10ms を経て減衰する様子が観測された。またイオン源から取り出された高温のイオンのみならず、532nm の Nd:YAG パルスレーザーで再加熱した場合にも同様に再起蛍光を検出することに成功した。

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、等しい質量を持つ 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。

我々は昨年度に、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 の色素レーザーであり、Q スイッチ Nd:YAG laser 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この色素レーザーの倍波発生によって生成し

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。本年度にかけて測定データの詳細な解析を進め、我々が観測した実験結果は 1P_0 状態の形状共鳴の理論計算結果と良い一致を見せることを明らかにした。これは、初めて実験に基づいて Ps の理論計算を検証することが可能になったという点で、陽電子が関連した原子物理における重要な一里塚である。さらに本実験手法を発展させることで、並進エネルギーだけでなく内部状態も可変なポジトロニウムビームを発生させることが可能である。

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過去数年間にわたって測定してきた。直線偏光によるイオン化は、電子再衝突過程、すなわち一度イオン化して生成された電子がレーザー電場によって再度親イオンと衝突することによって多重イオン化が進行することがよく知られているが、円偏光の場合、この再衝突が従来は起こらないとされていたが、最近この過程を巡って様々な論争が起こっている。

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や高速 TDC によって観測した。今年度は、円偏光だけでなく、楕円偏光を経て直線偏光にいたるまでの電子エネルギースペクトルの詳細を測定した。高強度の場合、レーザー 1 ショットに対して多数の電子が生成するためこれを全て観測することが重要になる。また、円偏光条件下では考慮していなかった低エネルギーの電子を観測するために磁場シールドなどの実験上の問題を検討した。

理論的取り扱いとして、数年前から開始電通大・森下やロシア・クルチャトフ研究所の Tolstikhin との共同研究も順調に進行し、実験結果と比較しうる断熱近似理論に基づく数々の解析的理論予想が可能となった。

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る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 2 重共鳴励起による Ar¹⁷⁺ イオンの高励起状態の生成

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 H-like Ar¹⁷⁺ の高励起状態($n=3$)を生成できることを、過去 2-3 年の実験で実証してきた。本年度は、理論的裏付けを得るため、共同研究者であるモスクワ大グループの開発したコードを用いた密度行列計算を行った。遷移強度を理論計算と比較することにより、我々の実験において確実に $n=3$ 状態が 2 重共鳴で生成されていることを確認した。また、高励起状態からの X 線放出確率を議論するため、密度行列計算コードの改造を行い、 $K\beta$ X-ray 放出収量の理論計算を行った。これにより、高励起状態への直接励起と 2 重励起の過程を区別することが可能となり、より精度の高い議論が展開された。また、昨年度の実験結果をサポートするため、6 月ビームタイムで追加データの取得を行った。

一般的に、固体内衝突における高エネルギーイオンの励起・電離断面積はよく知られており、電荷変

換に使用される薄膜中の価数分布変化は、ETACHA、GLOBAL 等の計算ツールによって高精度に再現されることが知られている。一方で、励起状態の断面積に関しては、実験的に測定することが困難であるため、その値は理論により大きく異なる。

RCE を用いた手法では、励起状態の電離断面積をパラメータとして、密度行列によるシミュレーションと実験データを比較することにより、これを精度よく求めることができると予想される。H-like Ar¹⁷⁺ を $n=1$ 状態からの $n=2, 3, 4$ 状態へ、同じ原子面によって生成される結晶場を用いて共鳴励起し、Si 結晶内での電離確率の増加を観測した。シミュレーションとの比較により、各状態の相対的な電離断面積を見積り、既存の断面積データの信頼性を評価する計画である。

4.2 極薄結晶を用いた RCE

RCE 過程において、結晶の厚さはレーザーのパルス幅に対応する重要なパラメータである。極短パルスレーザーにおいて、不確定性原理からエネルギースペクトル幅が広がるのと同様に、RCE においても結晶を薄くしていくことで共鳴幅が広がることが予想される。また、共鳴幅から結晶場との相互作用におけるコヒーレンスなど、共鳴の本質に関わる情報を引き出すことが可能となる。これまで厚さ 1 ミクロン以上の結晶を用いてきたが、今年度、NORCADA 社製の極薄シリコン単結晶メンブレン（厚さ 200 nm）を使った実験を試みた。445 MeV/u の H-like Ar¹⁷⁺ を用いて、(220)面チャネリング、および 1s-2p の RCE の観測に成功した。1 ミクロンの結晶に比べて、約 2 倍程度、広がった共鳴スペクトルが観測された。この幅の要因について標的の結晶性等を含め解析中である。

