

東原子分子物理研究室

Atomic, Molecular & Optical Physics Laboratory

主任研究員 東 俊~~之~~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. 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、負イオン、クラスター、合流衝突、低温反応、超励起状態、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、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、オコロコフ効果、多電子励起状態、脱励起X線、コンボイ電子、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、現在新たに開発している。宇宙における化学進化過程を実験的に探求するため、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なども知見を得ることが可能であると期待される。そのほかに、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既存のレーザー技術では困難な重イオンの分光や量子操作を可能とする「光を使わない励起・分光手法」としての位置を確立しつつある。

1. 静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突

今年度、首都大学東京グループとの共同研究では、液体窒素冷却型静電型イオン蓄積リングに、小型分子イオンから大型分子イオンまで正負様々なイオンを蓄積した。周回イオンの選別では、同時に蓄積された様々なイオンの周回周期を測定しながら、不要なイオン種をパルス電場にて取り除く手法が確立した。その結果、直鎖炭化水素負イオンの識別に成功している。このリングは、蓄積イオンの崩壊に伴う中性粒子強度を周回毎に検出することによって、ミリ秒から秒オーダーまでの遅い過程を追跡できるのが特徴である。寿命測定や波長可変レーザーによる選択的励起を利用した小型分子イオンの準安定状態に関する研究を、本格的に開始した。また、内部自由度の高い色素分子や炭素クラスター分子といった大型イオンの脱励起過程を、やはりレーザーを駆使した崩壊過程の観測から研究した。

1.1 直鎖炭化水素負イオンの寿命測定

セシウムスパタイオン源から引き出された直鎖炭素クラスター分子負イオン C_n ($n = 2-6$) に関して詳細な測定を行った結果、宇宙空間に存在する負分子イオンとして最近注目を集めている直鎖炭化水素負イオン、 C_mH ($m=2-6$) が同時に蓄積周回されていることを確認した。蓄積中に電子脱離を起こし中性化した粒子を検出することで寿命測定を行った結果、直鎖炭素クラスター分子負イオンでは、以前報告されているとおり、 C_2 、 C_3 、 C_5 でミリ秒程度の寿命を持つ準安定状態の成分が観測され、 C_4 、 C_6 ではこの成分は観測されなかった。一方、直鎖炭化水素負イオンでは、観測したすべてのイオン種 C_mH ($m = 2-6$) でミリ秒程度の寿命を持つ準安定状態の成分が存在することを発見した。なお、装置を常温および液体窒素温度に保った場合の寿命の変化が見られないことから、黒体放射の関与しない成分であることも確認した。

1.2 酸素分子正イオンの準安定状態の寿命測定およびレーザー分光

周回蓄積されたイオンに波長可変可視光レーザーを導入して、ある内部状態のイオンのみを選択的に光解離させると、特定の内部状態のイオンの追跡が可能になり状態選別した寿命測定が可能になる。その最初の例として、 O_2^+ イオンの準安定励起状態 $a^4\Pi_u$ の寿命測定を行った。 $a^4\Pi_u$ 状態はスピン禁制のため 100ms 以上の長い寿命を持ち、気相イオン反応において重要な役割を担う。これまで、イオントラップを用いた寿命測定などが報告されているが、その値は測定方法によって大きくばらついていた。今回観測された $b^4\Pi_g$ $a^4\Pi_u$ ($\Delta v = 3$) 吸収バンドに対する光解離スペクトルの形状は、イオン蓄積時間に依存して大きく変化した。すなわち、バンド中心部が 100ms 以内に素早く減衰するのに対し、両端のピークは数 100ms の寿命でゆっくり減衰している。これは、スピン状態 ($\Sigma = \pm 3/2$ あるいは $\pm 1/2$) に依存した放射寿命の差異によるものと考えられている。さらに図 1 に示すようにこの吸収バンドには、励起波長に依らず 3 秒という極めて長寿命の成分が存在していることが初めて確認された。

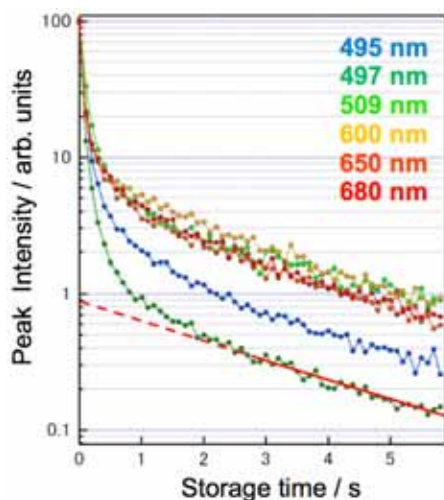


図 1 酸素分子正イオンに対する波長可変 OP0 レーザー照射時に増加する中性生成物収量のレーザー照射タイミング依存性
タイミング時間依存性

1.3 巨大分子イオンのレーザー分光

我々が、孤立状態における巨大分子イオンの分光学的研究の観測対象としてきたフタロシアニン亜鉛負イオンに関して、輻射冷却過程について検討するため、レーザーとの合流実験におけるイオン崩壊過程のレーザーフルエンス依存性を、イオン蓄積開始時からのレーザー導入タイミングを変化させながら測定した。その結果、蓄積時間の経過に伴い多光子吸収の寄与が増大していることが観測され、その依存性から冷却速度やイオンの蓄積内部エネルギーを推定することを試みた。一方で、 C_{60} 負イオンを対象として、レーザーの 1 光子吸収に伴うイオン崩壊の時間依存性から蓄積時間の経過に伴う冷却速度の変化を評価することも行った。

1.4 液体ヘリウム冷却型静電型イオン蓄積リング開発

現在、理化学研究所では、首都大学にて製作した 1 号機の装置で培ったノウハウをもとに新しい静電型蓄積リングを製作するための準備に取りかかっている。新しいリングでは、液体ヘリウム冷却によるさらなる低温化、それに伴うテーブルトップサイズまでの小型化を目指している。さらに、合流衝突するビームとして従来の波長可変レーザーのみならず、中性粒子ビームの導入を検討している。これは加速された負イオンをレーザーによる電子脱離させることにより製作するものである。この装置では、蓄積された分子

イオンの振動回転準位を制御した上で、イオン・中性衝突反応を探索することを第一の狙いとしている。

2. 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起

単結晶中を通過する高速イオンは、結晶周期ポテンシャルを振動電場として感じる。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、この現象はオコロコフ効果もしくはコヒーレント共鳴励起(RCE)と呼ばれている。我々は、HIMAC(放射線医学総合研究所重イオン加速器)から供給される約400MeV/uの多価重イオンをSi結晶に通過させ、出射イオンの電荷や脱励起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することを目標として実験研究を行ってきた。今年度は、10nm厚のSi薄膜結晶による通過原子面の周期性を利用する3D-RCE(3次元RCE)条件下での2重共鳴により、光学的手法では困難であった2重励起状態の選択的生成などを行った。また、生成2次電子測定による共鳴の観測を新しく開始し、励起イオンに関する詳細な情報が得られるようになった他、ドイツ・GSI重イオン研究所における精密分光実験も最初のテスト実験を実施し、共鳴過程を観測することに成功した。

2.1 3D-RCE 共鳴における磁気副準位の制御：アライメントのX線収量異方性による観測

3D-RCEの場合は、結晶面配列の方向により偏光方向が選択可能であり、これにより励起イオンがアライメントし、脱励起X線量において大きな角度依存性が存在することを定量的に観測した。電気双極子遷移(E1遷移)においてこのような磁気副準位のアライメントは、脱励起光の放出角度分布に直接反映される。イオン静止系において垂直(x)方向、水平(y)方向にそれぞれX線検出器を設置すると、垂直方向の検出器は2p状態のうち2pyと2pz副準位からの発光を検出し、水平方向では2pxと2pz副準位の脱励起が観測される。このような条件下で、He様のAr¹⁶⁺、Fe²⁴⁺イオンを基底状態(1s²)から1s2p状態に、さまざまな向きの原子面を使って励起した際に、水平、垂直方向のX線強度を観測すると、選択した結晶原子面配列が入射ビーム方向に対して傾い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X線放出が優勢になっていく様子が明瞭に観測された。これらの結果は理論的予測と極めて良く一致し、まさしく2p状態のアライメントが原子面配列の向きによって制御されていることを示した。

2.2 3D-RCEによるΛ型2重共鳴の脱励起X線観測による研究

我々は最近、He-like Ar¹⁶⁺の3D-RCEによるΛ型2重共鳴(1s² 1s2p, 1s2p 1s2s)を観測し、1s²(1¹S)から1s2p(2¹P)を介して準安定状態の1s2s(2¹S)へ遷移させた。これは、1s2p-1s2s間を振動電場でカップリングし、それを1s²-1s2pの振動電場でプローブしたとも表現される。2¹S - 2¹P間の周波数を固定して1¹S - 2¹P間を走査したところ、1¹S - 2¹P間遷移エネルギーを中心として2本に分裂したピークが、通過イオンの荷電分布プロファイルにおいて観測された。分裂したピークは、2準位間の強い相互作用に起因するAutler-Townes 2重項そのものであり、我々の観測した状況は、結晶振動電場によって形成された「ドレسد原子」という概念によって統一的に解釈されることが明らかになっている。

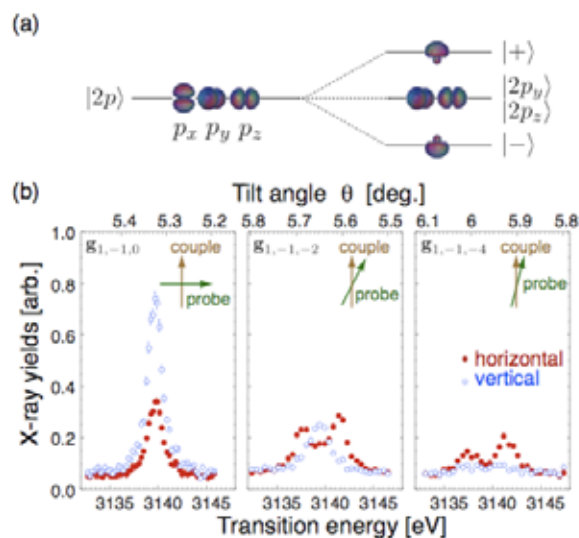


図2 電荷分布測定と同様の条件で、脱励起X線収量で観測した共鳴スペクトル。結晶(220)面に水平および垂直方向から観測した収量を同時に示す。

今年度は、脱励起 X 線測定によってこの 2 重共鳴を観測した。既に 2.1 で述べたように、3D-RCE において利用する原子面配列に応じて、特定の磁気副準位に対する選択的占有確率の操作ができる。2 重共鳴の実験においても、 2^1S - 2^1P 状態間を結合させる結晶振動電場として x 方向((220)面に垂直)に偏光しているものを利用した。そうすると、 2^1P 状態のうち 2^1P_x 成分のみが 2^1S 状態と電場の強い相互作用によって結合して分裂する。この場合、水平方向では、Autler-Townes 2 重項が観測される一方、鉛直方向では 2^1P_y 成分から無摂動状態の一つのピークのみが観測された。また、プローブ周波数の偏光方向を変えると特定の副準位を選択的にプローブすることができる。図 2 に、様々な偏光方向でプローブしたときに、X 線強度の観測から得られた共鳴プロファイルを示す。原子面列のうちミラー指数(1, -1, 0)成分を用いるとプローブの偏光がカップリングの偏光方向に対して垂直になり $1s2p_x$ 成分が励起されないため、エネルギー準位の分裂は観測されない。一方(1, -1, 4)ミラー指数の原子面配列をプローブとして選ぶと、カップリングと同じく、ほぼ x 方向に振動するため、ドレスト状態を形成した $1s2p_x$ 成分だけを選択的にプローブし、完全に分裂した二重項が観測される。このようにしてプローブ成分の偏光方向を選択することで、カップルされた副準位、またはカップルされていない副準位のエネルギー準位を選択的に観測することが可能になることを明瞭に示すことができた。

2.3 He 様 Ar^{16+} イオンの 3D-RCE のコンボイ電子による研究

高速で飛行する入射イオンから電離過程によって放出された 2 次電子は、入射イオンと等速で前方方向に進む。これらは一般にコンボイ電子と名づけられており、その幅はイオン化前の入射イオンにおける束縛電子の運動量分布を反映すると期待される。実験では、416MeV/u の He 様 2 電子系 Ar^{16+} イオンの結晶原子との衝突によって生成した、入射イオンとほぼ等速の 2 次電子を、真空チャンバー内の結晶標の下流数 10cm の位置に設置した磁場型電子分光器と SSD 型 Si 検出器で検出した。これによって磁場型分光器で 2 次電子の運動量、SSD でエネルギーを測定した。

ランダム入射条件およびに、(1, -1, 2)ミラー指数の原子面配列の 3D-RCE によって共鳴させた結果が、図 3 である。3D-RCE によって励起した成分に起因するコンボイ電子のエネルギー幅は、励起状態の運動量広がり狭いことを反映して、明瞭に狭くなったことが見てとれる。さらに波動関数の形に敏感な条件下で実験をすすめることを現在計画している。

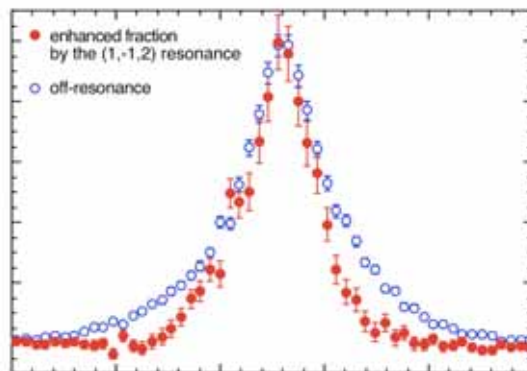


図 3 非共鳴条件下と 1 重共鳴における 0° 方向の 2 次電子エネルギー分布

2.4 3D-RCE によるラダー型 2 重共鳴の研究: 2 重同時励起状態生成

内殻軌道が空で複数の電子が外殻軌道にあるような多電子励起状態のイオンは中空イオンと呼ばれる。このような状態は、軌道電子間の相互作用が強いため、それぞれの電子を独立に扱う独立粒子モデル(または平均場近似)ではなく量子多体系の取り扱いが必要となる。また実験的にも選択的に中空イオンを生成することは容易でなく、その研究は理論的、実験ともに原子物理学における重要な課題である。

465MeV/u He 様 2 電子系の Ar^{16+} イオンを対象とし、(1, -2, -3)ミラー指数の結晶面配列を使って、 $1s^2 - 1s2p$ 励起を起こし、さらに(1, -1, 2)ミラー指数配列によって $1s2p - 2p^2$ 励起させること(図 4 参照)により

2 個の $1s$ 電子をすべて励起させることに成功した。1 電子励起状態に比べて、2 電子励起状態の方が結晶内原子との衝突によってイオン化しやすいことに加えて、Auger 電子を放出する自動電離過程が加わる。そのために、通過イオンの荷電分布を測定すると、2 重共鳴時に 1 重共鳴より 16+ 価のイオン生存割合が 1.5 倍程度減少することを観測した。

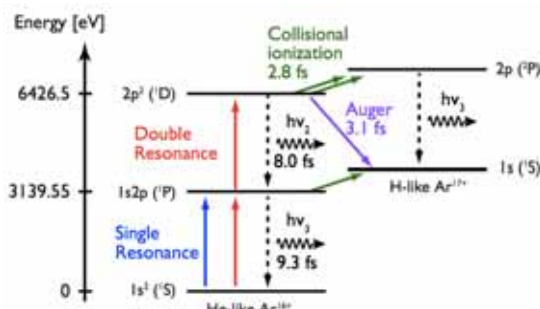


図 4 Ar¹⁶⁺の 2 重励起準位ダイアグラム

また、脱励起 X 線の放出過程では、2 重励起状態 $2p^2$ から $1s2p$ へ脱励起する際の X 線は 3287.0eV であるのに対して、 $1s2p$ から $1s^2$ へは 3139.6eV である。2 重励起状態が起こるときには前者の X 線放出が期待される。実際、Si(Li)X 線検出器の分解能が 150eV 程度であるので、これを区別することが可能である。その測定の際に明らかになったのは、2 重励起状態は、X 線放出による脱励起よりもイオン化によって崩壊している成分が多いことであり、さらに、イオン化に関して、結晶原子との衝突による電子損失より、Auger 電子を放出して崩壊してゆく過程の寄与が大きいことで推測された。これを直接的な形で観測することを目的として、Auger 電子を磁場型電子アナライザーで検出した。

図 5 左に示すように、非共鳴条件時には基底状態入射イオンの電子損失に起因するコンポイ電子ピークのみが観測され、1 重励起によって励起状態イオンからのイオン化が増加して、コンポイピークが増大した。一方、図 5 右に示すように、2 重共鳴時にはコンポイピークに加えて、Auger 電子に相当するピークがコンポイ電子の両側に現れた。すなわち、Auger 電子は 2.3 keV のエネルギーを持ってイオンから放出されるため、前方と後方に放出された電子のみがビームに対して前方 0 度方向で観測され、その運動量はそれぞれ 645 keV/c、495 keV/c となる。この観測は 2 電子励起状態の直接的証拠であるとともに、今まで不可能であった、X 線領域で自在かつ、選択的に多重励起状態を生成し、これを Auger 電子分光で研究可能であることを初めて示した例であり、今後の発展を考慮すると極めて重要な成果である。

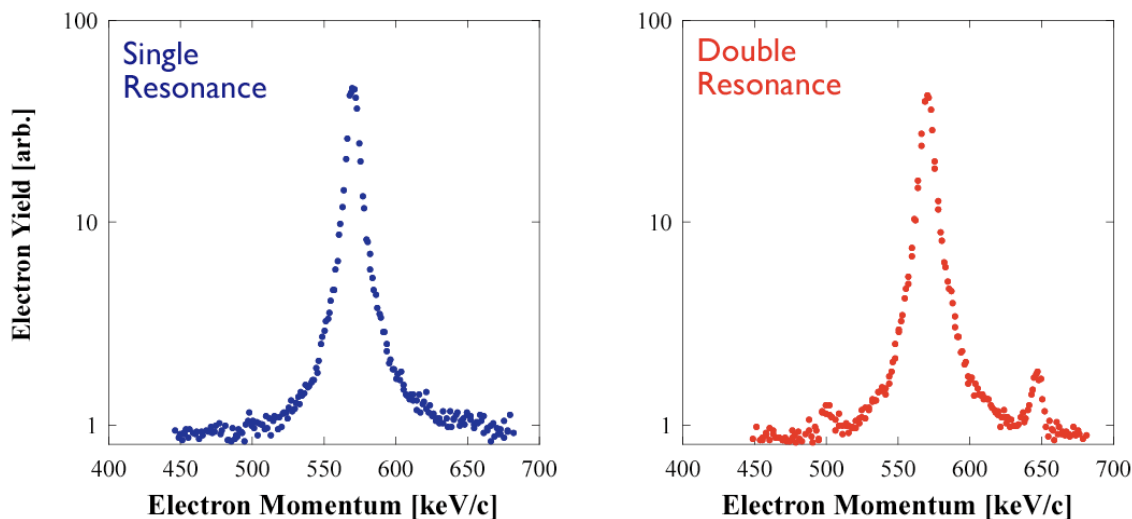


図 5 1 重共鳴条件 (左) および 2 重共鳴条件 (右) 条件下で観測した 2 次電子エネルギー分布

2.5 GSI 重イオン研究所における RCE 実験: 190MeV/u Li-like $U^{89+} 2s_{1/2} \quad 2p_{3/2}$

ドイツ GSI 重イオン研究所の施設を利用して、Li-like U^{89+} における $2s_{1/2}$ から $2p_{3/2}$ 準位への遷移(遷移エネルギー: 約 4.5keV)を精密測定することによる QED テストを目標とした実験を行った。電荷が大きくなると励起状態は短寿命で X 線放出して脱励起するため、共鳴観測は X 線が主となる。ビーム強度が弱く、RCE 励起確率も結晶周期電場の 2 次フーリエ成分を利用するために、比較的小さいことから、高検出効率 X 線測定が必須である。大面積(100mm²)Si ドリフト型 X 線検出器を真空チェンバー内に 4 個設置し、ペルチエ素子とヒートパイプの組み合わせによる冷却を実施した。その結果、理論の予想通りの条件で、共鳴ピークを観測することに成功した。なお、今回の実験で得られた共鳴幅には SIS 加速器から取り出される際のビームエネルギー幅や、その後の電荷変換のためにフォイルを通過した際のエネルギー拡がりも反映されていることは判明した。

Key Sentence :

1. Atomic, and molecular collisions using an electrostatic ion storage ring
2. 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, negative ion, cluster, merging collision, low-temperature reaction, super-excited state, meta-stable ions, radiative cooling, chemical evolution in space, bio-molecular ion reaction, laser spectroscopy, channeling, highly-charged ions, heavy ions, fast ions, resonant coherent excitation, Okorokov effect, multi-electron excitation, de-excitation x-ray, convoy electron, 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 crystals, from new methods and view points of atomic, molecular and optical physics.

We recently have started development of 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 also been trying manipulation of high-energy heavy atomic ions by the crystal periodic fields. Now this coherent excitation using a crystal is established as a new tool for spectroscopy and manipulation of heavy ions without using photons in the energy region from EUV to X-rays, which is not easily achieved by traditional laser technology.

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

In the collaborative works with the group of Tokyo Metropolitan University, we have dealt with a variety of positive and negative ions from small diatomic ions to large cluster ions stored in the liquid-nitrogen cooled electrostatic ion storage ring (TMU E-ring). We established the scheme of selection of the specific stored ions. We monitor the circulation frequencies of the all stored ions, and the unwanted ions species are kicked out by the multiple pulsed electric fields. We can efficiently trace the slow reaction or dynamics in the time range from the millisecond-order to the second-order by detecting the neutral product due to the stored ions decay or charge exchange with residual gas. We have started intensive studies of metastable states of small molecular ions through the lifetime measurement and selective excitation by a wave-length tunable visible lasers. Slow decay dynamics of the large ions like dye molecules and carbon clusters was also investigated.

1.1 Lifetime measurement of negative linear hydrocarbon ions

We stored negative linear hydrocarbon ions C_mH^- ($m = 2-6$) extracted from a Cs sputter ion source as well as negative linear carbon cluster ions C_n^- ($n = 2-6$). These molecules recently have been attracted much attention because they are found as negative molecules for the first time in the cold universe. We measured their lifetime by detecting the neutral products resulting from electron-detachment during storage, and found that, as for linear carbon cluster ions, C_2^- , C_3^- and C_5^- have metastable components as reported previously, while C_4^- and C_6^- have no such component. On the other hand, as for linear hydrocarbon ions, all ions species of C_mH^- ($m = 2-6$) have metastable components of the millisecond-order lifetime. We confirmed that these components are not related with blackbody radiation, since we observed no change of these lifetimes when the ring was cooled down to the liquid nitrogen temperature.

1.2 Lifetime measurement and laser spectroscopy of positive metastable oxygen ions

By irradiating the stored ions with a wave-length tunable visible laser, we can dissociate the ions in a certain state selectively. Thus, by tracing the ions in the specific inner state, we can determine the state-selective lifetimes. In this year, we measured the lifetime of the $a^4\Pi_u$ metastable state of O_2^+ ions. The $a^4\Pi_u$ state has the lifetime of more than 100ms since its transition to the ground state is spin forbidden, and it plays a crucial role in atmospheric physics. So far many data concerning the lifetime have been reported using ion traps and other devices, however they scatters to a large extent depending on the measurement methods.

We have observed that the shape of the photo-dissociation spectra corresponding to the absorption band $b^4\Pi_u \rightarrow a^4\Pi_u$ ($\Delta v = 3$) drastically changes as the storage time advances. The central region of the band decreases within 100ms, while the both ends decays slowly. This is well explained by that fact that radiative lifetime depends on the spin state ($\Sigma = \pm 3/2$ or $\pm 1/2$). It is noted that we for the first time have found an extremely long lifetime component of 3 seconds also exists in this band regardless of the excitation wave length, as shown in Fig.1.

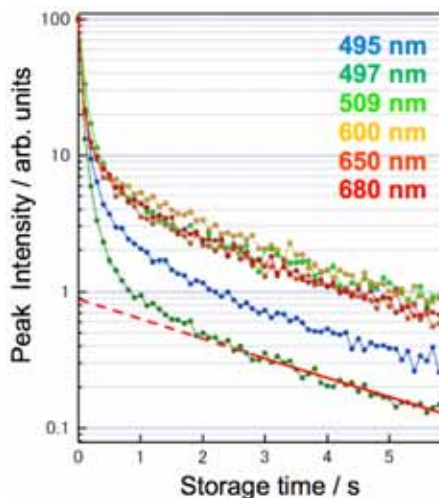


Fig.1 Laser-irradiation timing dependence of the enhanced neutral yield for wave-length tunable OPO laser irradiation to O_2^+ ions.

1.3 Laser spectroscopy of positive large molecular ions

We have already reported spectroscopy of negative zinc phthalocyanine ions in vacuum as an example of isolated large molecular ions. To observe the radiative cooling process of this ion, we measured laser-fluence dependence of the ion dissociation process by changing the laser irradiation timing from the starting point of the ion storage. Then, we found that the contribution of multi-photon absorption increases as the ion storage time advances, and estimated the cooling rate and the stored inner energy of the ions from this dependence.

In addition, we also evaluated the change of the cooling rate of negative fullerene ions of C_{60} depending on the ion storage time, from temporal change of the dissociation process resulting from the one-photon absorption of a laser.

1.4 Development of a liquid-helium cooled electrostatic ion storage ring

We started development of a new electrostatic ion storage ring at RIKEN, based on the experience and knowledge of the TMU E-ring now in operation. We aim the lower temperature operation of the ring by the liquid helium cooling, and the down-sizing to the table-top compact size. We plan to install a neutral beam as a merging beam together with the present visible laser. The neutral beam will be prepared by the photo-detachment of electron from accelerated negative ion. The mission is exploring ion/neutral collisions of the stored molecular ions in the specific vibrational and rotational states.

2. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions

A fast ion traveling through a single crystal feels the crystal periodic potential as the oscillating fields. When the frequency corresponds to the energy difference of the atomic levels of the ion, coherent excitation happens. This phenomenon is called Okorokov effect or resonant coherent excitation (RCE). We have been using 400MeV/u highly charged heavy ions supplied from the HIMAC heavy ion accelerator at the national institute of radiological sciences (NIRS) for this purpose. 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 and de-excitation x-rays from the excited ions while we change the angle between the incident ion beam and the crystal. We can observe 3-dimensional RCE (3D-RCE) utilizing the periodicity of the crystal atomic planes by adopting a thin Si crystal foil of 1 μ m in thickness. We tried selective formation of the doubly-excited heavy ions under the double resonance condition of 3D-RCE, which is not easily attained by conventional optical methods.

We recently have started observation of RCE through the detection of secondary electrons released from the excited states, which enables us to study the excited states in detail. We also started precise spectroscopy of heavy ions using the RCE technique at the GSI heavy ion research institute, Germany, and have succeeded in observing the clear resonance thorough de-excitation x-ray measurements as a first step.

2.1 Control of the population in the magnetic sublevels by 3D-RCE: alignment observed by x-ray yield anisotropy

We can select the polarization direction of the oscillating field that the ions feel, by selecting the array of the crystal atomic planes in 3D-RCE. We experimentally confirmed that the excited ions can be aligned using this polarization, which is confirmed by the large angular anisotropy in the de-excitation x-ray yield. Namely, such alignment of the magnetic sublevels is directly reflected in the angular distribution of de-excitation photon emission for the electric dipole (E1) transition. When we place the x-ray detectors in the perpendicular (x) and horizontal (y) directions, respectively, in the ion rest frame, the former detector detects x-rays from $2p_y$ and $2p_z$ sublevels in the $2p$ states, and the latter one detects x-rays from $2p_x$ and $2p_z$ sublevels. Under this experimental condition, We excited helium-like Ar^{16+} and Fe^{24+} ions from the ground state ($1s^2$) to the $1s2p$ state with the array of the crystal atomic planes. As the selected array of the atomic planes tilt with respect to the incident ion beam, the direction of the polarization inclines to the x-direction, By measuring the x-ray yield both in perpendicular and horizontal directions, we clearly observed that the x-rays are emitted in the horizontal direction preferentially. This observation well agreed with theoretical prediction, and we confirmed that alignment of the $2p$ state can be controlled by the selection of the array of the crystal atomic planes.

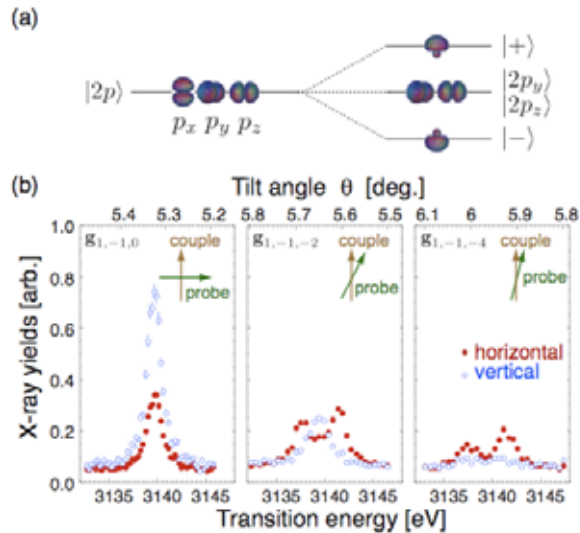


Fig.2 Resonance profiles observed by the x-ray yields, when the direction of the polarization of coupling and probing oscillating fields is controlled. The x-ray yields detected in the horizontal and perpendicular to the crystal (220)planes is shown.

2.2 The Λ -type double resonance of 3D-RCE observed by de-excitation x-rays

We recently have investigated the Λ -type double resonance of 3D-RCE in helium-like Ar^{16+} ($1s^2 \ 1s2p$, $1s2p \ 1s2s$) where we excited from the $1s^2(1^1S)$ state to metastable $1s2s(2^1S)$ state through the $1s2p(2^1P)$ state. When we scanned the frequency corresponding to the $1^1S - 2^1P$ transition (probing) by rotating the crystal, while fixing the frequency corresponding to the $2^1S - 2^1P$ transition (coupling), we observed split peaks at the position of the transition energy of $1^1S - 2^1P$ in the charge-state resonance profile. The split peak is ascribed to a well-known Autler-Townes doublet owing to the strong interaction between the two states, and this behavior is well described by the concept of the “dressed atom” formed by the crystal oscillating field. In this year, we studied this double resonance by measuring de-excitation x-rays. As already described at the section 2.1, we can control the population in the magnetic sublevels by 3D-RCE.

In the double resonance experiment, we utilized the array of the crystal atomic planes corresponding to the x-direction (perpendicular to the (220) plane) in the polarization for coupling between the 2^1S - 2^1P states. Then, the 2^1P_x component in the 2^1P state couples the 2^1S state by the strong field and forms a split state. We can distinguish the x-rays from the 2^1P_x and 2^1P_y states using the angular distribution of de-excitation x-ray emission. The Autler-Townes doublet was observed in the horizontal direction, while a non-perturbative single peak was observed in the perpendicular direction. We also can selectively probe the specific sublevel by selecting the polarization direction of the oscillating field for probing. Figure 2 shows the resonance profiles of the x-ray yield for various polarization directions of probing. In the case that the array of the atomic planes of the (1, -1, 0) Miller index is applied, the polarization of probing is orthogonal to that of coupling, and thus, the $1s2p_x$ component is not excited and the splitting is not observed. On the other hand, when we select the atomic planes of the (1, -1, 4) Miller index, its polarization is almost directed to the x-direction as the coupling field. Therefore, the completely split doublets are observed since we can probe only the $1s2p_x$ component forming the dressed state. Thus, we could clearly show that we can selectively observe the coupled or uncoupled substates.

2.3 3D-RCE of He-like Ar¹⁶⁺ ions observed by convoy electron measurement

Electrons released from the traveling ions proceed in the forward direction at the same velocity with that of the incident ions, which is often called as convoy electron. Their width is expected to reflect the bound electron's momentum distribution of the parent ion before ionization. We detected the secondary electron emitted into the forward direction (the zero degree to the ion beam) from 416MeV/u helium-like Ar¹⁶⁺ ions passing through an 1 μm-thick Si crystal by placing a magnetic analyzer coupled with a SSD-type Si detector at the 10 cm downstream of the target crystal in the vacuum chamber. The magnetic analyzer measured the momentum of the ions and the SSD measured their energy. Under the resonance condition, the convoy electron yield enhances, because the excited ions increases and they are more easily ionized.

Figure 3 shows energy distribution of the convoy electrons under the conditions of non-resonance and 3D-RCE by the array of the atomic planes of the (1, -1, 2) Miller index. Narrowing of the energy width originating from the excited component by 3D-RCE was clearly observed. We now plan to extend this type of experiments in the condition where the ion alignment and the wave function behavior reflect the energy width of this convoy electrons more sensitively

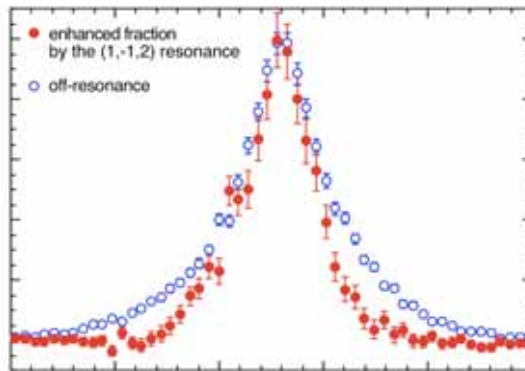


Fig.3 Secondary electron energy distributions in the forward direction under non-resonance and resonance conditions.

2.4 The Ladder-type double resonance of 3D-RCE: doubly-excited states

Multiply-excited ions with all of bound electrons in the outer shell, that is, with an completely empty inner shell are often called as “hollow” ions. The strong interaction between the bound electrons in this hollow ions requires theories dealing with quantum many particle systems to describe the system appropriately beyond the independent electron model (or the mean field approximation). Experimentally selective formation of the hollow ion is not easy. Thus, the investigation of the hollow ion is one of the most interesting subjects in atomic physics theoretically and experimentally.

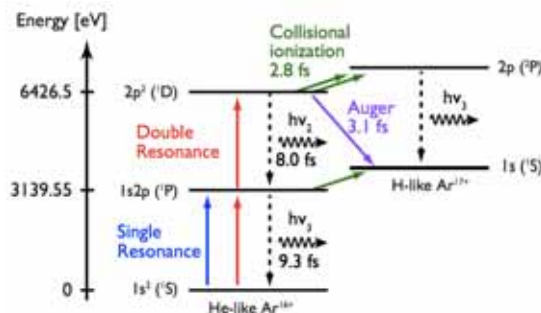


Fig.4 The level diagram of doubly-excited state of Ar¹⁶⁺ ions

We performed the ladder-type double resonance of 3D-RCE of 465MeV/u helium-like Ar^{16+} ions with two bound electron. As seen in Fig. 4, we first excited the ions from $1s^2$ ground state to the $1s2p$ singly-excited state by the array of the atomic planes of the (1,-2,-3) Miller index. Then we further excited the ions from $1s2p$ state to the doubly-excited $2p^2$ state by the array of the atomic planes of the (1,-1,2) Miller index. In this sequence we succeeded in exciting all of two electrons to form the double-excited state selectively. Doubly-excited ions are more easily ionized by the collisions with target atoms compared with singly-excited ones. In addition, they decay thorough the auto ionization process accompanied by the Auger electron emission. Thereby, we experimentally observed that the survival fraction of the incident ions with charge of 16+ decreases 1.5 times more under the double resonance condition compared with the single-resonance condition.

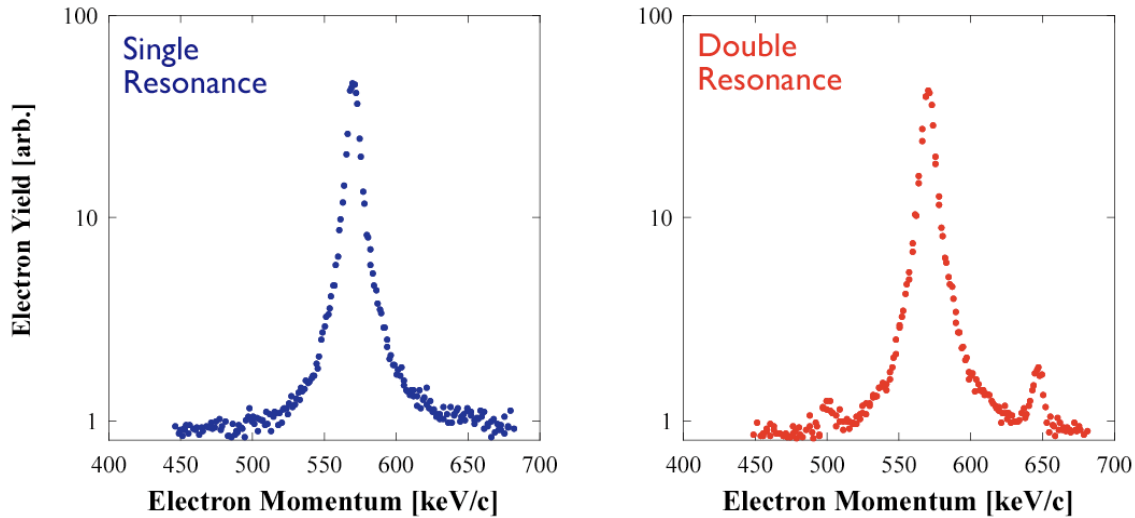


Fig.5 The secondary electron energy distributions at the zero-degree direction under the conditions of single (left) and double (right) resonances.

As for the de-excitation process, x-ray energy from doubly excited $2p^2$ state to $1s2p$ state is 3287.0eV, while that from the $1s2p$ state to the $1s^2$ state is 3139.6eV. We can expect to observe the former x-ray emission for the doubly-excited state formation. Experimentally we can distinguish these two x-ray energies because the resolution of the Si(Li) x-ray detector is about 150eV.

From this measurement we noticed that the doubly-excited state decays by ionization rather than x-ray emission, and furthermore as for ionization, Auger electron emission is more preferred than ionization by the collision with the atoms in a crystal. Accordingly, to observe the decay process of the doubly excited state more directly, we measured the Auger electron by adopting a magnetic analyzer as described in the section 2.3.

Figure 5 (left) shows that only convey peak due to electron loss from the ions by the collision with target atoms. Under the double resonance condition, in addition to the convey electron peak two new peaks appeared corresponding to the Auger electrons at the both shoulders of the convey electron peak as shown in Fig.5 (right). Since the Auger electron with an energy of 2.3keV are released from the traveling ions, we can observe the electron emitted in forward and backward directions by the analyzer placed at the forward (zero-degree) positions, as a result, the momenta of them are 645 keV/c and 495 keV/c, respectively. This observation is a direct evidence of the selective doubly-excited state formation in the x-ray energy region, which has not been attained before by the optical methods. We regard that this is an important milestone for the progress in this field.

2.5 Precise Spectroscopy of $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ of Li-like U^{89+} by RCE

We tried precise spectroscopy of the 4.5keV transition from the $2s_{1/2}$ to $2p_{3/2}$ state of Li-like U^{89+} ions by

RCE aiming the QED test at the strong field at GSI heavy ion research institute, Germany. As the nuclear charge increases, the excited state radiatively decays rapidly. Therefore, we observed RCE by measuring the x-rays. Since the beam intensity is not so high, and the excitation probability is relatively small due to the second order Fourier component of the periodic field adopted, the high-efficiency x-ray detection was necessary. Four large-area (100mm²) Si drift x-ray detectors were installed in the vacuum chamber, and cooled by combination of a Peltier device and a heat pipe. We succeeded in observing clear RCE resonance, and the observed peak position is in good agreement with the theoretical prediction. It is noted that the resonance width of the observed peak reflects the ion beam energy width provided from the SIS ring together with the energy straggling resulting from the ion passing through the stripper foil for charge stripping.

Principal Investigator

東 俊行 Toshiyuki Azuma

Students

須田 慎太郎 Shintaro Suda

Assistant and Part-timer

高野 由加 Yuka Takano

Visiting Members

粟屋 容子 Yohko Awaya

田沼 肇 Hajime Tanuma

城丸 春夫 Haruo Shiromaru

間嶋 拓也 Takuya Majima

松本 淳 Jun Matsumoto

中野 祐司 Yuji Nakano