

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. 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起
3. レーザー光と粒子ビームの合流衝突

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, 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  
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、現在新たに開発している。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。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光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、現在新たに開発している。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。これに加えて、極短パルス高強度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。

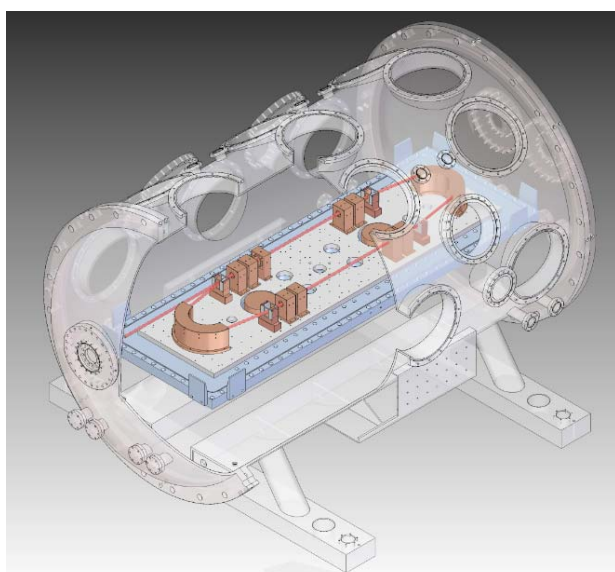


図1 建設中の極低温静電型イオン蓄積リングの概念図

1. 静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突

1.1 極低温静電型イオン蓄積リングの開発

10K 以下の極低温に冷却可能なイオン蓄積リングの設計・開発を行った。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、昨年度よりイオンビーム軌道計算と概念設計を開始したものである。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。

本年度は開発チームを拡大し、より具体的な構造、冷却機構の基本設計を行った。ステンレス、6N高純度銅、及びクロム銅合金など複数の材料を効果的に併用することで低温にて高い熱伝導率を持ち、かつ超高真空を実現する特殊な真空チャンバーを設計した。また、約 1/5 サイズのプロトタイプ機を製作して冷却・真空テストを行うことにより、熱伝導性や真空シール部の改善などの課題を本体設計へフィードバックし、最終的な仕様・パラメータを決定して製作を開始することができた。

## 1.2 中性ビーム源の開発

低温原子分子反応の実験的観測を通じた宇宙の分子進化過程の解明、及び超低エネルギー衝突における量子的な反応ダイナミクスの解明を目指し、合流ビーム実験のための中性粒子ビーム源の開発を行った。セシウムスパッタ型負イオン源の立ち上げを行い、エネルギー20 keVの炭素負イオンビームの引き出しに成功した。本イオンビームを制御するための4重極レンズ、偏向電磁石を製作し、軌道計算ソフトウェアSIMION及びCOSY INFINITYを利用したシミュレーションを行い、ビームライン設計を行った。また、発生させた負イオンビームを光電子脱離過程によって中性化するためのNd:YAGレーザーの整備を行った。イオン源に隣接してクリーンベンチを設置し、2倍波(波長532 nm)で1.05 Jと、十分なパワーを得ることに成功した。

## 1.3 クラスタイオン源の開発

マグネトロン型金属クラスタイオン源の開発に続き、電子衝撃型分子クラスタイオン源を電子銃と分子パルスビームの組み合わせにより製作した。これを加速した上で生成分子種を簡便に検出できる飛行時間測定型のリフレクトロンに接続し、実際に正負の分子クラスタイオンを確認した。この手法によって生成されたクラスタイオンをイオン蓄積リングに導入予定である。

### 1.3 液体窒素冷却型静電型イオン蓄積リング

#### 1.3.1 巨大分子イオン入射システムの開発

今まで首都大において開発してきた巨大分子生成ESIイオン源の後段に、イオン数を増加しさらに冷却化することを目的として、極低温イオントラップ部を設置した。ここに蓄積されたイオンは、GM冷凍機により4Kに冷却された電極に囲まれた環境下でガス衝突させることにより冷却される。冷却イオンを引き出して、電極にパルスのように高圧を加えることによりパルス加速し、リングに導入することに成功している。このようにして生成した周回メチレンブルー正イオンに対する可視波長可変OPOレーザー合流実験も開始され、今後リング導入効率の向上や実際のイオンの温度評価などの実験へ展開予定である。これらのシステムが完成したのち、これを基本型とした同様のシステムを我々の理研極低温イオン蓄積リングに導入する計画である。

#### 1.3.2 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、直鎖状炭化水素負イオンを蓄積し電子脱離による寿命を測定してきたが、本年度はC<sub>4</sub>からC<sub>10</sub>イオンにおよぶ直鎖状炭素クラスタイオンすべてを対象としてその挙動を統一的に理解することを目指した観測を行った。その結果、イオン源で生成され蓄積リング中をミリ秒時間領域で周回するイオンは、小型分子イオンであるものの振動励起した高温状態にあり、自動電子脱離による中性粒子生成は冷却過程を強く反映していることが判明した。一般に負分子イオンの熱化後に起こる遅延過程による電子脱離は、分子イオンが高温では速く低温になるにつれ遅くなる。蓄積リングで観測される中性粒子生成はこれらの過程の内、測定に適した領域のみが切り取って観測される。従って、波長可変レーザー合流によって電子脱離させる際にも、中性粒子生成で観測される吸収スペクトルの解釈は注意を要することが明らかになった。

## 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)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。

## 2.1 水素様鉄イオンの1重共鳴：脱励起X線における放出角度異方性の観測

3次元コヒーレント共鳴励起(3D-RCE)法によって通過イオンに対する特定の準位への励起が可能である。結晶原子面配列を選択することによって励起に利用する振動電場の偏光を制御できる。このようにして磁気副準位を選択した偏極水素様重イオンからの放出脱励起X線における異方性は、スピン軌道相互作用が大きく寄与し、理論的にも極めて興味深い。しかしながら、実験的には適したX線レーザーが利用できなかったため、従来困難であった。また電子-イオン衝突による実験は報告されてきたが、このような衝突系から偏光効果を議論するのは容易ではない。

我々は、1ミクロン厚のシリコン結晶を通過する核子あたり460 MeVの水素様 $\text{Fe}^{25+}$ イオンから垂直・水平方向に放出される $\text{K}\alpha$  X線を測定した。3D-RCEに利用する結晶面の選択することによって偏光方向依存性を観測される。水素様イオンの場合、 $2p_{1/2}$ 準位からのX線放出は等方的であるが、 $2p_{3/2}$ 準位からの放出角度分布には軌道角運動量を反映して異方性が存在し、さらにスピン軌道相互作用が影響を与える様子が明瞭に観測された。

## 2.2 リチウム様アルゴンイオンのラダー型2重共鳴：脱励起X線分光観測

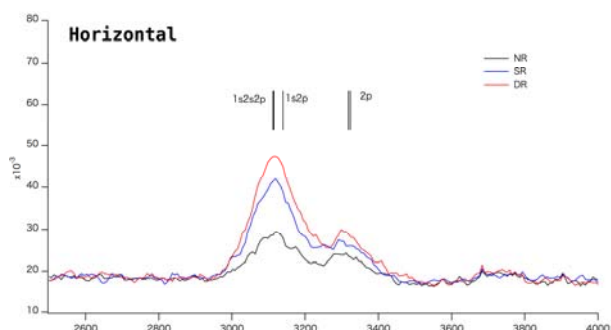


図2 非共鳴条件，1重共鳴，2重共鳴条件下におけるArイオンから水平方向に放出されたX線のエネルギースペクトル。なおX線エネルギーは、実験室系から飛行イオンからの座標系に変換済み。

昨年度リチウム様(3個の束縛電子をもつ)重イオンの2重共鳴励起によって生成される3重励起状態、すなわちK殻がすべて空孔で3個の電子がL殻に存在する特異な状態から放出されるオージェ電子を観測した。本年度は核子あたり445MeVリチウム様 $\text{Ar}^{15+}$ イオンを使った同様の条件下で、励起イオンから放出される脱励起X線の2重励起条件下での増加を観測することに成功した。通過イオンの荷電分布，オージェ電子，さらに脱励起X線からの得られた実験結果に理論的シミュレーションを加えることによって反応過程の定量的な全容が明確になると期待される。

## 3 レーザー光と粒子ビームの合流衝突

本年度極短パルス高強度可視レーザーシステム，波長可変可視色素レーザー，さらに波長可変可視OPOレーザーの設計および導入を行った。これらは課題指定型理事長ファンド「次世代開拓課題」「粒子ビームと光があやなす最先端科学の開拓」において，必要となるレーザー光生成を担う主要装置である。この課題では粒子ビームとレーザー光とを組み合わせ，光によって制御された粒子ビームを使った物理，化学，生物を横断するビーム科学を開拓するための基礎を固めることを目的としている。整備を進めているイオン蓄積イオンリングに周回させたイオンビームに対して，様々な波長領域と時間幅をもつレーザー光を導入することによって，リングに蓄積された生体分子イオンの短時間領域のダイナミクスの追跡のみならず，光による分子配向制御などを行う予定である。

-----

**Key Sentence :**

1. Atomic, and molecular collisions using an electrostatic ion storage ring
2. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions
3. Merging experiments of a laser beam with atomic and molecular beams

**Key Word :**

atomic and molecular physics, atomic collision, ion storage ring, electrostatic ring, ion trap, isolated single molecule, cluster, 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, highly-charged ions, heavy ions, fast ions, channeling, 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 a ultra short-pulsed intense lasers and crystals, from new methods and view points of atomic, molecular and optical physics.

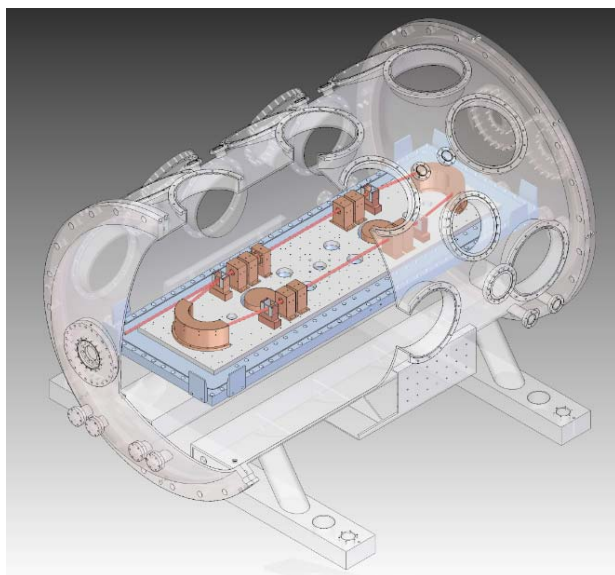
We are now in progress of construction of a compact electrostatic ion storage ring dedicated for investigating molecular collisions and dynamics. Low-energy collisions and reactions of cold molecular ions in the specific vibrational and rotational states prepared by the ring is our primary mission to 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 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 an electrostatic ion storage ring**

**1.1 Cryogenic electrostatic ion storage ring**

We have been developing a cryogenic electrostatic storage ring since 2010, 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.



**Fig. 1** Schematic view of our cryogenic electrostatic ion storage ring under construction.

Based on the design concept and the beam trajectory simulations prepared last year, we did the basic design of the vacuum structure, beam-transport elements, and cooling mechanism. With the use of stainless steel, 6N high-purity copper, and chromium copper alloy, we designed a special vacuum chamber, which has high thermal conductivity and excellent vacuum property at cryogenic temperatures. A prototype vacuum chamber was built at a scale of 1:5 for testing its cooling and vacuum properties. These tests performed with the prototype have made significant improvements to the final design of the storage ring, and put them to the manufacturing phase.

**1.2 Neutral beam source**

A neutral beam source was developed for the merged-beam experiments with cold molecular ion beam, which allows the laboratory study of the cold collision dynamics in the interstellar spaces. A new beam line has been built and tested with a negative carbon ion beam at 20 keV. For transport and neutralization of the negative ion



beam, we prepared an additional electrostatic quadrupole lens and dipole magnet. Beam trajectory simulation is done using the SIMION and COSY INFINITY. We also developed a beam neutralization system using the photo-detachment process by a second harmonic from a Nd:YAG laser. The laser system was installed, and successfully provided enough laser power of 1.05 J for neutralization of the negative ion beam.

### 1.3 Cluster ion source

A molecular cluster ion source was developed by combining an electron gun and a molecular pulsed beam, following an magneto-sputter type metal cluster ions source constructed in the last year. Produced positive and negative molecular cluster ions were accelerated and guided into a reflectron-type time-of-flight measurement system to identify their mass. In near future this ion source will be connected to the ion storage ring under construction.

## 1.2 Experiments with an electrostatic ion storage ring of room temperature

### 1.2.1 Development of the injection system of large molecular ions

At Tokyo Metropolitan University (TMU), where an electrostatic ion storage ring (TMU E-ring) is already under operation at room temperature, we constructed a cryogenic ion trap to store large molecular ions produced in electro-spray type ion (ESI) source, prior to the injection into the ion storage ring, for the purpose of ion cooling and enhancement of their intensity in a pulsed-injection mode. Cooling is achieved by buffer gas collisions under the circumstance of 4K electrodes prepared with a GM-type cooler. We already have succeeded in introducing the stored ions into the TMU electrostatic ion storage ring at room temperature after extraction from the ion trap and acceleration by the pulsed mode high-voltage switching.

Laser merging experiments with a tunable visible OPO laser has started, and R&D for enhancement of the injection efficiency to the ring and evaluation of the effective temperature of the store ions are planned. After finishing the test of this system, the same system will be connected to the cryogenic ion storage ring under construction in RIKEN.

### 1.2.2 Lifetime measurement and spectroscopy of negative linear hydrocarbon ions and carbon cluster ions

To study the electron detachment and radiative de-excitation processes of the negative molecular ions found in cold universe, we have been measuring the lifetime of these ions stored in the ring by monitoring the time-dependent neutral product yield. In this year we extended the ion species to negative carbon cluster ions covering from  $C_4^-$  to  $C_{10}^-$  ions, in order to survey their consistent behavior. We found that these ions produced in a laser-desorption ion source or a Cs-sputter ions source, although their sizes are not so large, are in vibrationally excited states in the time range of  $ms$  to hundred  $ms$  and the neutral product formation through electron detachment are deeply affected by the radiative cooling process.

Generally, electron detachment of negative ions in the delayed process, taking place after thermalization, proceeds faster for the hotter ions. The measurement of time-dependent neutral production yield in the ion storage ring selectively provides the information on process satisfying the specific condition of the ion temperature. It was revealed that the action spectra of the neutral yield obtained by introducing a merging wave-tunable laser requires careful analysis for interpretation.

## 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 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. We have studied RCE also by the detection of secondary electrons released from the ions.

### 2-1. Single Resonance of H-like Fe ions: anisotropy in the direction of de-excitation x-ray emission

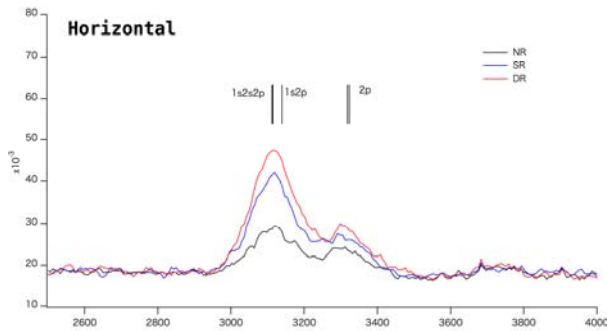
Using the 3D-RCE technique we can excite the ions into the specific excited state. Polarization of the virtual photon of 3D-RCE is intuitively controlled by selecting the array of the crystal atomic planes. Anisotropy in the direction of de-excitation x-ray emitted from aligned H-like heavy ions is quite interesting from a view point of fundamental physics, since it reflects spin-orbit ( $ls$ ) interaction.

However, it was not feasible experimentally due to the lack of suitable linearly polarized x-ray lasers. Although the experiments in the electron-ion collisions were reported, it is not straightforward to extract the polarization effect from such collision systems. Theoretically, in the case of H-like ion, 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, and the  $ls$  interaction

contributes to the depolarization. We measured  $K\alpha$  x-rays emitted in the vertical and horizontal directions from 460 MeV/u H-like  $\text{Fe}^{25+}$  passing through a  $1\mu\text{m}$ -thick Si crystal, and studied the polarization dependence by changing  $m$  of the  $(k,l,m)$  atomic planes for 3D-RCE. The obtained results suggest that the emission from  $j=1/2$  states is indeed isotropic, but that from  $j=3/2$  is slightly anisotropic, which agrees with theoretical prediction.

## 2-2. Ladder-type Double Resonance of Li-like Ar ions: spectroscopy of de-excitation x-ray

In 2010, we succeeded in Auger electron observation for double resonance excitation of Li-like ions leading to hollow atom formation which accompanies all of three bound electrons in the  $n=2$  excited states. In 2011, under the same condition for 445 MeV/u Li-like  $\text{Ar}^{15+}$  ions, we succeeded in observation of the de-excitation x-rays



**Fig. 2** The x-ray spectrum from the Ar ions emitted in the horizontal direction under the non-, single-, and double-resonance conditions, respectively. The x-ray energy is converted from the laboratory frame into the projectile frame.

from the Ar ions. Under the single resonance condition, compared with the case under the non-resonance condition, enhancement of both x-ray yields from Li-like and He-like ions was observed. Furthermore, these yields increased under the double resonance conditions. They were qualitatively explained by the fact that not only excited Li-like ions increased but also He-like ions were produced through ionization of these Li-like ions. We now have all of the experimental information of projectile charge states, Auger electrons and de-excitation x-rays, which enable us to simulate the whole process using the rate equation approach. Now the detailed analysis is under way.

## 3 Merging experiments of a laser beam with atomic and molecular beams

We introduced an ultra-short-pulsed laser system, a visible wave-tunable dye laser, and a wave-tunable OPO laser by designing these laser systems suitable for our merging experiment with particle beams. They are key instruments in the program of the Strategic Programs for &D; Exploring Advanced science by Combination of a Particle Beam and Photon. This project aims to establish basic approach to develop beam science covering interdisciplinary area of physics, chemistry, and biology. By introducing photons of a variety of wave-length and time-range, we are now planning to try not only the dynamics study in the short-time scale but also control of molecular orientation with a large bio-molecular ions stored in vacuum in the ring or trap.

### ***Principal Investigator***

東 俊行            Toshiyuki Azuma

### ***Research Staff***

小林 峰            Takane Kobayashi

中野 祐司         Yuji Nakano

大下 慶次郎      Keijiro Ohshimo

金井 恒人         Tsuneto Kanai

榎本 嘉範         Yoshinori Enomoto

後藤 基            Motoshi Goto

増永 拓也         Takuya Masunaga

### ***Students***

須田 慎太郎      Shintaro Suda

森本 航            Wataru Morimoto

戸田 新之輔      Shinnosuke Toda

安田 知世         Tomoyo Yasuda

白幡 昌也         Masaya Shirahata

設楽 有里         Yuri Shitara

定森 貴大         Takahiro Sadamori

### ***Assistant and Part-timer***

高野 由加         Yuka Takano

佐藤 利恵         Rie Sato

門馬 知子         Tomoko Momma

### ***Visiting Members***

粟屋 容子         Yohko Awaya

木村 一字         Kazuie Kimura

田沼 肇            Hajime Tanuma

城丸 春夫         Haruo Shiromaru

間嶋 拓也         Takuya Majima

松本 淳            Jun Matsumoto

古川 武            Takeshi Furukawa

丑田 公規         Kiminori Ushida