

令和 5 年 6 月 4 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K03782

研究課題名（和文）レーザー励起とイオンビームトラップによる準安定状態イオンの精密寿命分光への挑戦

研究課題名（英文）Challenge to precise lifetime spectroscopy of metastable states of ions by laser excitation and ion beam trapping

研究代表者

斉藤 学（Saito, Manabu）

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：60235075

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：静電型イオンビームトラップに蓄積したイオンをレーザー光励起で準安定状態にし、その放射寿命を精密に測定する方法の開発に取り組んだ。開発した方法のテストとして、トラップに蓄積した分子イオンからの再帰蛍光および光吸収解離の測定を行った。その結果、蓄積イオンの蛍光検出および蓄積イオンのレーザー光励起に成功していることが確認できた。レーザー光励起したイオンの蛍光測定では、ある波長領域で高計数のバックグラウンド光子が確認され、これが測定の妨げになった。この原因を明らかにした上で装置の改良を行い、バックグラウンド光子を1/10まで低減させた。改良した装置を用いた光子測定が現在進行中である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

励起状態のイオンが壊れずに存在できる時間をその状態の寿命という。励起状態のイオンの寿命に関する研究は、原子・分子物理や放射線物理、プラズマ科学、宇宙科学などの様々な学術研究分野で必要とされている。本研究は、申請者が開発した静電型イオンビームトラップによる精密寿命測定法にレーザーイオン励起法を組み合わせることによって、前者の方法では測定できていなかった励起状態イオンの寿命測定を可能にすることを目的とした。本研究の測定法を実現することは、様々な励起イオンの高精度な寿命測定を必要とする多くの研究分野にとって非常に重要な意義がある。

研究成果の概要（英文）：Using an electrostatic ion beam trap, a method was developed to precisely measure the radiative lifetime of stored ions excited to a metastable state by laser absorption. Using this method, measurements of recurrent fluorescence and photodissociation reactions of stored molecular ions were individually carried out, and it was confirmed the successful detection of fluorescence emitted from the stored ions and the excitation of stored ions by laser photon. As a next step, the measurement of emitted fluorescence from laser-excited ions was performed. It was found that high background photons were generated in a certain wavelength region, which prevented the measurement of the emitted fluorescence. After clarifying the cause of the background photons, the apparatus was improved and the background photons were reduced to 1/10. Photon measurements using the improved apparatus are underway.

研究分野：原子・分子物理学

キーワード：準安定状態寿命 イオンビームトラップ レーザー励起 分光計測 プラズマ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

準安定状態にあるイオンの放射寿命は、様々な学術研究分野で必要とされているデータである。原子分子物理や放射線物理、プラズマ科学の分野でも、たとえば多電子原子や分子の電子状態理論のテストやプラズマの分光診断には、高精度の放射寿命測定データが不可欠である。準安定状態にあるイオンの脱励起は禁制遷移であるために、その放射寿命はミリ秒から秒に至る。これまではこの長時間の寿命を得るために、イオントラップに一定数の準安定状態イオンを蓄積し、その放出光子数の時間変化を測定してきた。この時間依存の減衰曲線から、禁制遷移の寿命が決定される。

一般的なイオントラップ装置では、トラップ内に直接導入した気体から電子衝撃等で準安定状態イオンを生成する。このとき、トラップ内の導入ガスとの散乱や中性化衝突によって蓄積イオンは時間とともに減少する。そのため、放射寿命の測定値に対する残留ガス衝突の影響を補正しなければならず、この補正が測定精度に大きく影響するという問題が生じていた。また、イオン化の過程で生成される比率の低い準安定状態の放射寿命測定では、統計的に十分な光子数を検出することが困難であった。

これに対して本研究代表者の斉藤らは、keV エネルギーのイオンビームを蓄積する静電型のイオンビームトラップを開発することに成功した。このトラップの特徴は、イオン源がトラップ装置の外にあるためにイオン源ガスを直接トラップ内に導入する必要がないことである。また、蓄積イオン数を精度良くかつ簡便に測定できる能力を備えていることも大きな特徴である。斉藤らは、この装置を用いて数種類の多価イオンについて準安定状態の放射寿命を測定し、他グループのこれまでの測定結果に比べて測定精度が大幅に向上することを示した。

一方、斉藤らは、イオン源での生成比率が低い準安定状態の放射寿命の精密測定にはまだ至っていなかった。静電型イオンビームトラップを用いて様々な準安定状態イオンの精密寿命測定を可能にすることは、準安定状態あるイオンに対する新たな精密寿命測定法のプロトタイプを示すものである。また、禁制遷移に限らず、たとえば、分子イオンの振動回転励起状態の長時間放射寿命測定にも本方法は適用可能であるなど、本研究の成果は、放射寿命の高精度データを必要とする多くの研究分野にとって非常に重要な意義がある。

2. 研究の目的

静電型イオンビームトラップによる精密寿命測定法にレーザーイオン励起法を組み合わせることによって、より多くの種類の準安定状態イオンの精密寿命測定を可能にする。そのために、(1) トラップ内部に閉じ込めたイオンビームとトラップ外部から入射したレーザービームとの合流システムを設計・設置し、これによってレーザー励起イオンビームをトラップ内に準備する。

(2) トラップに蓄積した励起イオンビームからの放射脱励起光子を検出するシステムを設計・設置し、準安定状態の放射寿命測定を可能にする。

(3) レーザー光によって、トラップに蓄積したイオンを目的の準安定状態に選択的に励起し、その放射寿命を決定する。

ことが、本研究の目的である。

3. 研究の方法

本研究で開発した装置・方法の概要を、図1を用いて説明する。(1)と(4)は本件研究開始時にすでに開発済みであった装置と手法である。

(1) 静電型イオンビームトラップへのイオンビームの蓄積

電子衝撃型のイオン源で生成した keV エネルギーのイオンビームを静電チョッパーでパルス化する。そのパルスビームを 45° 分析電磁石で質量分析し、目的のイオンビームだけをトラップに入射する。イオンビームの入射後、入口側の電極に所定の電圧を印可することで、パルスビームをトラップ内に閉じ込める。パルスビームは、入口側と出口側の電極間を往復走行し続ける。本研究では、パルスビームの時間幅をイオンがトラップ内を 1 往復する時間に設定し、可能限り最大数のイオンを蓄積する条件で実験を行う。

(2) レーザービーム合流システムの設置

レーザー装置は、波長を 1064, 532, 355, 266 nm に変更することが可能な Nd:YAG レーザーを使用する。レーザーパルスの幅は 5 ns で、周波数は 10-20 Hz、レーザー径は 3 mm である。発信したレーザー光は 2 枚のミラーで上下左右の軌道を調整された後に、トラップ中央部に取り付けられた反射防止仕様の熔融石英窓を通り、トラップ内に入射する。その後、トラップ内でイオンビームと直角に交差した後、再び熔融石英窓からトラップ外へ出射する。レーザーパルスのエネルギーはパワーメーターで測定される。イオンビームの径はレーザーの径より大きい約 8 mm であり、よってレーザービームの径を反応領域の径とみなすことができる。レーザーの発振

はパルスジェネレーター (PG) からの信号で制御されており、イオンビームへのレーザー照射を任意の時刻に設定できる。

(3) 放出光子検出系の設置

図1の右図のように、光電子増倍管と2枚の収束レンズ、光学フィルターからなる光子検出系を、イオンビームおよびレーザービームと直交する方向に設置した。レンズの焦点は、イオン・レーザー交差点および光電子増倍管の光電面に合わせている。レーザー励起されたイオンから放出された光子を、レンズで集光すると同時に、光学フィルターによって波長分光し、光電子増倍管で検出する。検出した光子数の時間変化を、チョッパーへのパルス化信号をスタート時間として、マルチチャンネルスケーラー (MCS) に記録する。一定時間の後に、蓄積イオンビームをトラップより掃き出してMCSを止める。本測定ルーチンを多数回繰り返すことによって、放出光子の時間スペクトルを得ることができる。レーザー発振時刻とこの時間スペクトルより、レーザー励起されたイオンの準安定状態の放射寿命を決定できる。最終的に得られた準安定状態の寿命を過去の理論・実験データと比較し、本測定法の精度を検討する。

(4) 蓄積イオン数のモニター

蓄積するイオンの中性化や解離で生じる中性粒子は、電場によってトラップ内には閉じ込められないので、トラップの出入り口より外へ逃れる。この中性粒子数を、トラップ後方のビームライン上に設置したマイクロチャンネルプレート (MCP) で検出し、その時間変化を光子と同時に MCS に記録する。中性粒子の計数率はトラップに蓄積されているイオン数に比例するので、このデータによって測定毎の蓄積イオン数のばらつきを校正する。

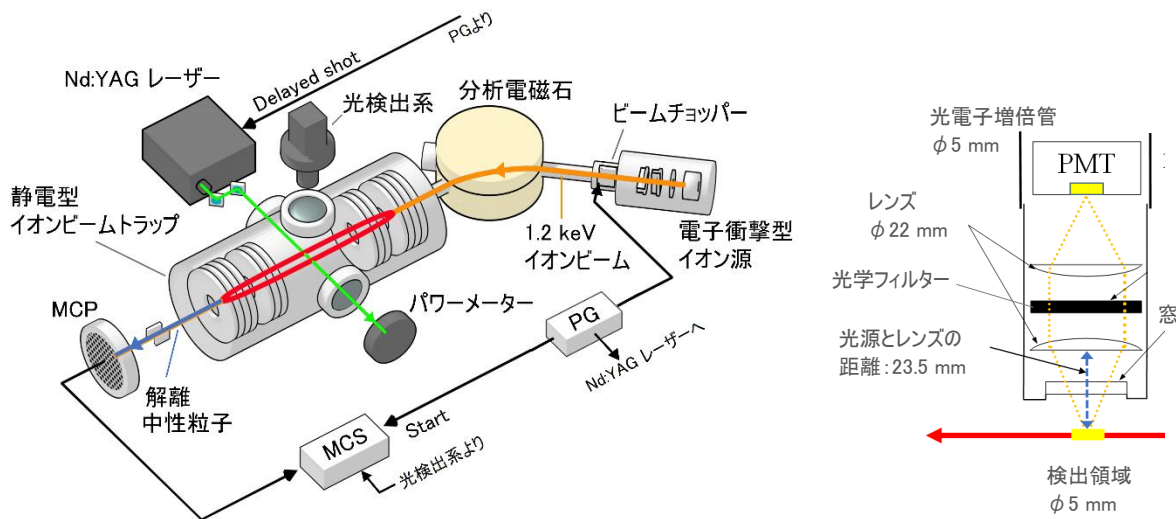


図1 装置の全体概略図および光検出系

4. 研究成果

(1) 蓄積イオンからの放出光子の測定

設置した光子検出系の動作確認を、トラップに蓄積したナフタレンイオン ($C_{10}H_8^+$) から放出される再帰蛍光を測定することで行った。イオン源で電子励起された $C_{10}H_8^+$ イオンは直ちに内部転換によって電子基底状態の振動励起状態に移行するが、真空中にイオンが孤立している場合には、再度電子励起状態に戻って蛍光を放出することがある。これが再帰蛍光である。 $C_{10}H_8^+$ の再帰蛍光の放出時間は数百マイクロ秒からミリ秒のオーダーと予想されており、準安定状態の放射寿命に匹敵するほどの長さである。また $C_{10}H_8^+$ は本イオン源でただちに生成可能であることから、 $C_{10}H_8^+$ の再帰蛍光過程を動作確認に選択した。

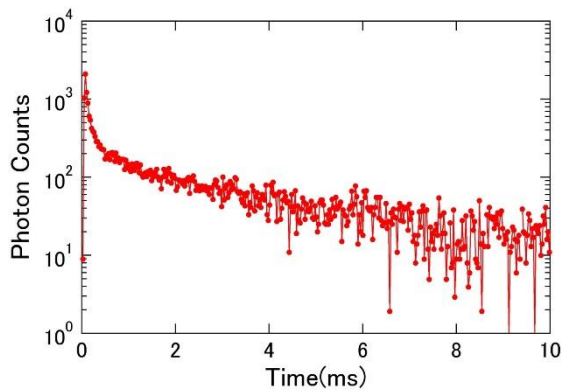


図2 光子検出系による再帰蛍光測定結果

図2に測定された光子計数率の時間変化を示す。 $C_{10}H_8^+$ の $1^2B_{2g}-1^2A_u$ 遷移に伴って放出される 652 nm の光子をフィルターで弁別し、

測定した。この準位間の蛍光時間は理論計算からマイクロ秒以下と見積もられる。一方、結果を見るとミリ秒のオーダーまで光子が観測されており、蓄積した $C_{10}H_8^+$ の再帰蛍光を本光子検出系で検出できていることがわかる。

(2) レーザー励起による蓄積イオンからの解離粒子の測定

蓄積イオンビームとレーザービームのアラインメントの調整、および蓄積イオンのレーザー励起を確認するために、 $C_{10}H_8^+$ の光吸収解離測定を行った。 $C_{10}H_8^+$ の解離しきいエネルギーは 4 eV 程度であるため、266 nm (4.66 eV) の紫外光子吸収で $C_{10}H_8^+$ は熱解離を起こす。図 3 に中性粒子の時間スペクトルの測定結果を示す。30.05 ms の鋭いピークは、レーザー発振のノイズピークであり、レーザー照射時刻を表している。その後、中性解離粒子のピークが 9.5 μ s の時間間隔で観測されている。レーザーパルスの幅は 5 ns、トラップ内での $C_{10}H_8^+$ の半周時間は 9.5 μ s である。よって、これらの連続するピークは、レーザー光を吸収した励起 $C_{10}H_8^+$ からの解離中性粒子であることがわかる。この結果から、レーザービームによって蓄積イオンビームを励起できていることが確認できた。ビーム同士のアラインメントは、2 枚のミラーでレーザービームを上下左右方向に少しずつスキャンし、スペクトルの中性解離粒子ピーク収量が最大になることを指針として行った。さらに、ベンゼンイオン ($C_6H_6^+$) についても同じ測定を行い、レーザー合流システムやアラインメント調整法が蓄積イオン種に依存しないことを確認した。

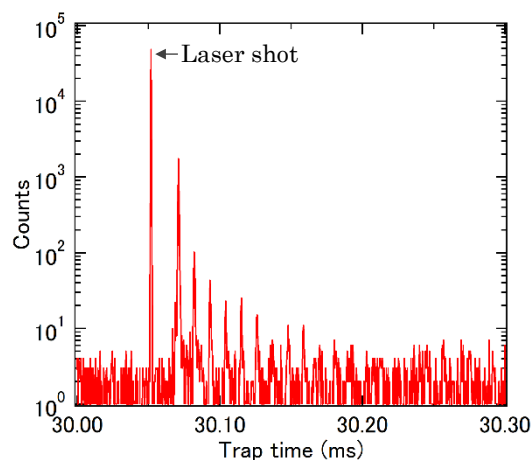


図 3 266 nm レーザー照射による解離中性粒子測定結果

(3) レーザー励起による蓄積イオンからの放出光子の測定

(1) と (2) の研究成果を得た後に、蓄積イオンビームとレーザービームの合流によって、光吸収励起したイオンから放出される脱励起光子の測定を目指した。まず、(1)、(2) の場合と同じイオン種、レーザー発振条件および光検出系の設定で、レーザー励起による再帰蛍光光子の測定を行った。しかし、650 nm 以上の波長で高いバックグラウンド光子が検出されることが妨げとなり、脱励起光子を観測することができなかった。266 nm の光子はフィルターによって検出器に直接入るのを妨げられているため、レーザー光本体がバックグラウンドであるとは考えにくい。石英窓の位置が光検出系に近づくほどバックグラウンドが高くなる等を確認した上で、バックグラウンド光子の原因は、(i) レーザービームが石英窓に入射する際の窓の発光、および(ii) レーザービーム発散成分の真空ダクト鏡面仕上げ内壁による散乱であることがわかった。これらを踏まえ、バックグラウンド低減の対策として、(i) 光検出系とレーザー入射窓および出射窓との距離をそれぞれ約 8 倍と約 3 倍に延長し、(ii) これら延長部を含めて、鏡面磨きを施されていない内壁の真空ダクトに交換し、(iii) レーザービーム固有発散成分の低減のために複数のホールスリットを入射窓直前に設置した。さらに、上記 3. で説明した測定ルーチンの繰り返しにおいて、イオンビームの蓄積を 1 回置きに行うことができる装置に変更した。この変更によって、蛍光光子スペクトルと同時にバックグラウンド光子だけのスペクトルを得ることができるようになった。これらの装置改良を行った結果、バックグラウンドを 1/10 に低減させ、さらに、バックグラウンド光子の影響をデータ処理によってスペクトルから取り除くことができるようになった。改良後の装置による光子測定は現在進行中であり、研究期間内に目的 (3) の最終結果に到達することはできなかったが、今後の日本物理学会において報告する予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Saito M., Kubota H., Yamasa K., Suzuki K., Majima T., Tsuchida H.	4. 巻 102
2. 論文標題 Direct measurement of recurrent fluorescence emission from naphthalene ions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 12820
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.102.012820	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 福崎利仁, 山佐一樹, 楠田淳之介, 間嶋拓也, 土田秀次, 斉藤学
2. 発表標題 静電型イオンビームトラップとレーザー照射を用いたベンゼンカチオンのエネルギー緩和過程の研究
3. 学会等名 原子衝突学会第47回年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山佐一樹, 楠田淳之介, 福崎利人, 土田秀次, 間嶋拓也, 今井誠, 斉藤学
2. 発表標題 静電型イオンビームトラップに蓄積したナフタレンカチオンのレーザー誘起反応の観測
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山佐一樹, 鈴木鴻介, 楠田淳之介, 間嶋拓也, 土田秀次, 今井誠, 斉藤学
2. 発表標題 静電型イオンビームトラップを用いたナフタレンカチオンからの蛍光観測
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山佐一樹, 鈴木鴻介, 楠田淳之介, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次, 斉藤学
2. 発表標題 ナフタレンカチオンからの再帰蛍光の分光測定
3. 学会等名 原子衝突学会第45回年会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------