

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K20110

研究課題名(和文) 冷却分子イオンビームを用いた分子イオン時計遷移波長の実験的導出

研究課題名(英文) Experimental determination of the transition energy with a cold molecular ion beam toward molecular ion clock development

研究代表者

木村 直樹 (Naoki, Kimura)

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・研究員

研究者番号：80846238

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：次世代原子時計の候補の一つとして期待されている『分子イオン時計』の実現に貢献する分光実験を目指し、理化学研究所の極低温静電型イオン蓄積リングを用いた冷却分子イオンビームの実験を遂行した。当初予定していたCaH⁺の実験はイオンビーム生成の確認のみにとどまったが、同じ質量を持つArH⁺を用いたテスト試験を実施し、500秒のイオン蓄積に成功した。これによって、CaH⁺イオン蓄積の実験パラメータが決定された。また、本分光実験に不可欠な低ノイズの高速中性粒子検出器の開発にも成功した。さらに、他のイオン蓄積・分光実験を通じて、実験室プラズマにおける状態分布や孤立系における輻射冷却過程の理解が大きく進んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題の成果によって、CaH⁺の分光実験の道筋がつけられた。今後、分子イオン時計の実現に向けて最も重要な振動遷移波長の分光情報が得られるものと期待される。また、本課題で整備された検出器は、C₂⁻、N₂O⁺など他のイオンの分光およびイオン蓄積実験に活用され、当初予定していなかった知見が数多く積みあがっている。本知見は、このような二原子分子、三原子分子の長時間ダイナミクスにのみ現れる特異的な効果を検証する、より野心的な研究課題へと引き継がれている。

研究成果の概要(英文)：We have performed the cold molecular ion beam experiments with the RIKEN cryogenic electrostatic ion storage ring RICE to contribute realization of "Molecular ion clocks". The molecular ion beam of CaH⁺, our original target, was successfully generated. Additionally, we succeeded in the long-time storage of the ArH⁺ ion beam, which has the same mass as CaH⁺. In the relevance experiment, we studied rovibrational molecular structures and radiative cooling of C₂⁻ and N₂O⁺ ions stored in RICE. The knowledge obtained through these experiments may contribute to the CaH⁺ spectroscopy.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：冷却分子イオンビーム イオン蓄積リング 分子分光 輻射冷却 実験室プラズマ 中性粒子検出

1. 研究開始当初の背景

近年、レーザーとその周辺技術の発展に伴い、光周波数標準(原子時計)の研究は目覚ましい進歩を遂げている。中性原子や一価原子イオンの可視光近傍領域の時計遷移を精密に測定する2世代の原子時計(光格子時計・単一イオン時計)は、現在の時間の一次標準であるCsマイクロ波時計の不確かさを既に凌駕し、近々行われる予定の秒の再定義に備えて国際的な調整を行う段階に突入している。一方で、第3世代原子時計と称される原子核時計、多価イオン時計、分子イオン時計も、ここ5年ほどの間にマイルストーンとなる成果が立て続けに発表されており、その開発への期待が高まっている。第3世代原子時計には、時計遷移分光値の経時変化を数年にわたって観測し、その変動を評価することで、基礎物理定数の時間変動の有無を検証する役割も期待されている。なかでも、分子イオン時計の分光対象である振動遷移は、陽子電子質量比 ($\beta = m_p / m_e$) の変動に対して敏感にシフトする一方で、微細構造定数 α の変動に対しては感度を持たない。このような特徴を持つ原子時計の方式は他に無く、陽子電子質量比 β の変動を高感度に評価出来る唯一のプロープとして、その重要性・注目度は非常に高い。

本課題で注目する $^{40}\text{CaH}^+$ は、分子イオン時計の最も有力な候補と目されているイオンである。10年以上前に情報通信研究機構の梶田氏によって、『振動遷移($\nu=0 \rightarrow 1$) が外部摂動に極めて鈍感で時計遷移として有用であること』『高周波イオントラップ内でレーザー冷却した $^{40}\text{Ca}^+$ を用いて容易に $^{40}\text{CaH}^+$ のクーロン結晶を生成・捕捉出来ること』『 $^{40}\text{Ca}^+$ を介した量子論理分光によって超高精度の分光が可能であること』などの優位性が指摘されて以降、世界各地で実験的研究が活発に進められており、既にクーロン結晶化と量子論理分光の実証が報告されている。しかしながら、肝心の時計遷移の量子論理分光実験は実施されていない。この原因は、時計遷移の量子論理分光を行う前にその波長を少なくとも5桁程度の不確かさで把握しておく必要があるにも関わらず、本遷移の波長情報が理論計算値しか存在していないことにある。

2. 研究の目的

分子イオン $^{40}\text{CaH}^+$ の振動準位間($\nu=0 \rightarrow 1$) のエネルギーすなわち時計遷移波長を実験的に測定することを旨とし、イオンビームとレーザーの合流による分光実験を推進する。

3. 研究の方法

本課題の分光実験では、理化学研究所東原子分子物理研究室の実験装置“極低温静電型イオン蓄積リング(RICE: Riken Cryogenic Electrostatic ion storage ring)”を利用し、分子イオンの内部状態を輻射冷却によって制御しながらレーザー分光を行うことで、振動準位間のエネルギーを導出する。図1に具体的な実験装置と分光手法の概念を示し、その詳細を以下に説明する。まず、プラズマイオン源内で生成した $^{40}\text{CaH}^+$ を RICE 内に輸送・導入し、静電ポテンシャルの軌道上を周回させることでイオンビームとして空間捕捉する。一定時間の蓄積後、イオンビームと平行に波長可変のパルスレーザーを照射し、光解離によって生じる中性水素原子(H)の収量を観測することで、ドップラー拡がり排除した波長スペクトルを測定できる。その際、電子励起状態を中間束縛状態とする過程を用いると、分子イオンの始状態と電子励起状態の差分に相当するエネルギー(波長)でのみ共鳴的に光解離を生じる。高温のプラズマから引き出された分子イオンビームは振動励起準位に大きな占有密度を持つため、蓄積時間が短い場合は、振動励起準位($\nu=1$)

からの共鳴が観測される。一方、蓄積時間の経過とともに輻射による自発的な脱励起が進行して振動基底準位の占有密度が増加するため、長時間蓄積後にレーザー照射を行えば、振動基底準位 ($\nu = 0$)からの光解離の共鳴遷移を観測出来る。 $\nu = 0, 1$ からの共鳴エネルギーの差分が時計遷移のエネルギーに相当するため、各共鳴遷移の波長を比較することで、時計遷移のエネルギーすなわち波長の導出が可能となる。

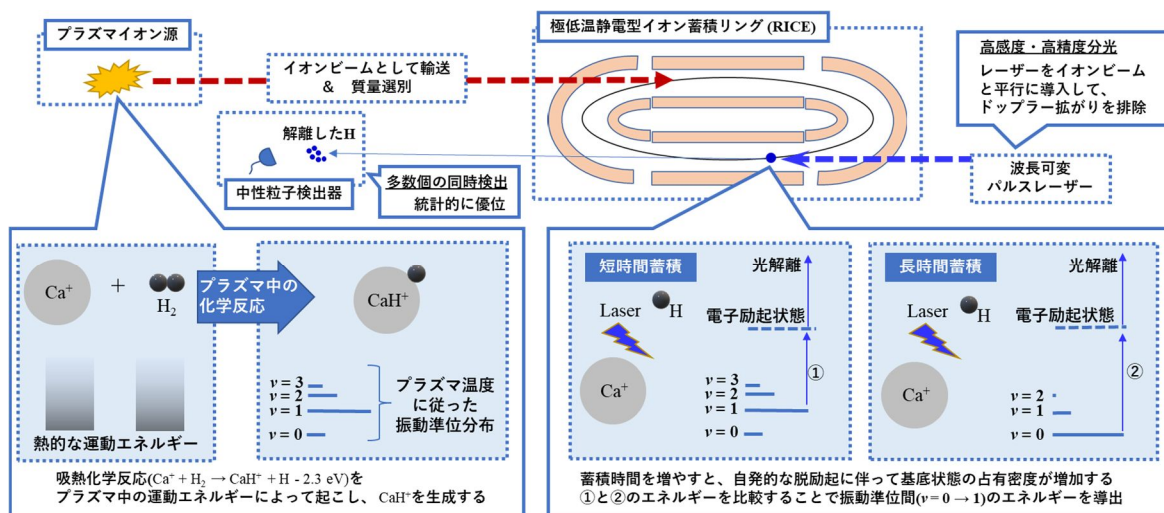


図 1. RICE を用いた実験の概念図

4. 研究成果

(1) $^{40}\text{CaH}^+$ イオンビーム生成

RICE と独立のオフライン装置を用いて、目的の分子イオン $^{40}\text{CaH}^+$ がプラズマイオン源で十分に生成可能かどうかを確認した。本オフライン実験では、高電圧を印加したカルシウム化合物のターゲットに対してパルスレーザーを照射し、飛行時間法 (Time-of-flight) を用いた質量分析によって、引き出されたイオンビームの種別を観測した。結果として、複数の化合物ターゲットでレーザーアブレーションによる $^{40}\text{CaH}^+$ の生成に成功し、なかでも、水素化カルシウム CaH_2 が最も効率よく $^{40}\text{CaH}^+$ を生成できることを確認した。

(2) $^{40}\text{ArH}^+$ を用いたイオン蓄積試験

$^{40}\text{CaH}^+$ イオンビームが RICE 内で長時間捕捉可能であることを確認するため、RICE に常設されている電子サイクロトロン共鳴型イオン源 (ECR イオン源) で生成した $^{40}\text{ArH}^+$ のイオン蓄積実験を行った。 $^{40}\text{ArH}^+$ は $^{40}\text{CaH}^+$ と同じ質量を有するため、ほぼ同じ条件でイオン蓄積実験を行えると期待される。精密なビームチューニングの結果、分光実験に十分な量のイオンを蓄積出来る実験パラメータを見出し、500 秒の長時間蓄積にも成功した。これは、本課題が対象とする振動準位の冷却のみならず、回転準位の冷却の観測をも可能にする蓄積寿命である。過去にも $^{20}\text{Ne}^+$ イオンなどを用いて 100 秒以上の蓄積時間を達成してはいたが、これまで試したことの無い質量で同等程度のパフォーマンスを確認できたことの意義は大きい。

(3) 低ノイズ高速中性粒子検出器の開発

$^{40}\text{CaH}^+$ イオンの分光実験では、共鳴多光子解離を利用したレーザー分光法を扱う。本手法は、比較的高密度のパルスレーザーを照射する必要がある。これまで我々は、レーザーとイオンビームの実験をする際、高速の中性粒子が Al 標的に衝突した際に生じる二次電子をチャンネルトロン

で測定する原理の高速中性粒子検出器を用いていた。しかしながら、検討の結果、従来の検出器では、共鳴多光子解離に必要な強度のレーザーを照射した際、レーザー起因のノイズが大量に発生し、中性粒子が検出できず、分光実験が困難であることが判明した。そのため、従来のAI標的の代わりにレーザー起因の二次電子が出にくいとされるグラフェンを標的に採用した新しい低ノイズ検出器を開発した。従来の検出器との比較の結果、大幅な低ノイズ化に成功したことを確認し、これにより本分光手法の道筋が立った。

(4) その他のイオンの分光・輻射冷却過程の観測

新型コロナウイルス感染拡大によって実験活動が制限されたことも影響し、目的の $^{40}\text{CaH}^+$ イオンの分光実験を期間中に割り当てることは出来なかったが、新たに開発した高速中性粒子検出器は、RICEにおける別のイオンの実験に利用され、当初予定していなかった成果が多く積みあがっている。たとえば、本検出器を用いた二原子分子負イオン C_2^- のレーザー光電子脱離実験では、これまで観測されたことのない極めて高い励起状態からの電子脱離スペクトルを観測されている。また、直線三原子分子正イオン N_2O^+ の実験においては、フェルミ共鳴の有無による振動冷却効果の違いを世界で初めて観測することに成功している。

(5) 新たな分子イオン時計候補の探索

当初の予定にはなかったが、理論研究者と協力し、新たな分子イオン時計の候補を探索する活動も推進した。その結果、 HeH^+ や NeH^+ などの水素化希ガス分子イオンの有用性を見出し、その系統誤差・統計誤差として期待される値を理論的に議論した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5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 Kajita Masatoshi, Kimura Naoki	4. 巻 53
2. 論文標題 Prospects in rare-gas hydride ions for terahertz frequency standards	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 135401 ~ 135401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ab894b	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 -
1. 著者名 Hirota A., Igosawa R., Kimura N., Kuma S., Chartkunchand K. C., Mishra P. M., Lindley M., Yamaguchi T., Nakano Y., Azuma T.	4. 巻 102
2. 論文標題 Radiative cooling dynamics of isolated N20+ ions in a cryogenic electrostatic ion storage ring	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 023119 ~ 023119
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.102.023119	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 -
1. 著者名 Igosawa R., Hirota A., Kimura N., Kuma S., Chartkunchand K. C., Mishra P. M., Lindley M., Yamaguchi T., Nakano Y., Azuma T.	4. 巻 153
2. 論文標題 Photodissociation spectroscopy of N20+ in the ion storage ring RICE	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 184305 ~ 184305
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0027805	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 -
1. 著者名 Kimura Naoki, Kodama Ryunosuke, Priti, Numadate Naoki, Suzuki Kento, Monobe Masashi, Nakamura Nobuyuki	4. 巻 102
2. 論文標題 5p-4f level crossing in palladium-like ions and its effect on metastable states	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 032807 ~ 032807
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.102.032807	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 -

1. 著者名 Kajita Masatoshi、Kimura Naoki	4. 巻 89
2. 論文標題 Prospect for Vibrational Transition Frequency Measurement of Rare-gas Hydride Ions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 114301 ~ 114301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.89.114301	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13件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 原山朔弥, 木村直樹, 久間晋, Kiattichart Chartkunchand, 飯澤正登実, 山口貴之, 中野祐司, 東俊行
2. 発表標題 極低温静電型イオン蓄積リング RICE を用いた N20+ の輻射振動冷却 V
3. 学会等名 日本物理学会第77回年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 飯澤 正登実, 久間 晋, 木村 直樹, Kiattichart Chartkunchand, 原山 朔弥, 山口 貴之, 東 俊行, 中野 祐司
2. 発表標題 極低温イオン蓄積リングRICEを用いたC2-の時間分解レーザー誘起電子脱離スペクトルの測定
3. 学会等名 日本物理学会第77回年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 原山朔弥, 木村直樹, 久間晋, Kiattichart Chartkunchand, 飯澤正登実, 山口貴之, 中野祐司, 東俊行
2. 発表標題 グラフェン標的を用いた高速中性粒子検出器のレーザー起因ノイズ評価
3. 学会等名 原子衝突学会第46回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 飯澤 正登実, 久間 晋, 木村 直樹, Kiattichart Chartkunchand, 原山 朔弥, 山口 貴之, 東 俊行, 中野 祐司
2. 発表標題 C2 - のレーザー誘起電子脱離スペクトルにおける未同定線の観測
3. 学会等名 原子衝突学会第46回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木村直樹, Priti, 河野泰隆, Pipatopakorn Pativate, 早乙女京吾, 沼館直樹, 久間晋, 東俊行, 中村信行
2. 発表標題 多価イオン禁制遷移に対するプラズマアシストレーザー分光の実証および超微細構造分裂の観測
3. 学会等名 原子衝突学会第46回年会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木村直樹, Priti, 河野泰隆, Pipatopakorn Pativate, 早乙女京吾, 児玉龍之介, 沼館直樹, 久間晋, 東俊行, 中村信行
2. 発表標題 Pd様多価イオン17+の禁制遷移レーザー分光
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 原山朔弥, 木村直樹, 久間晋, Kiattichart Chartkunchand, 飯澤正登実, 山口貴之, 中野祐司, 東俊行
2. 発表標題 グラフェンシートを用いた低雑音高速中性粒子検出器の開発
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	N. Kimura, Priti, Y. Kono, P. Pipatpakorn, K. Soutome, R. Kodama, N. Numadate, S. Kuma, T. Azuma, N. Nakamura
2. 発表標題	Laser spectroscopy of forbidden transitions between metastable excited states of $17+$ in an electron beam ion trap
3. 学会等名	The 32nd International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (VICPEAC 2021) (招待講演)
4. 発表年	2021年

1. 発表者名	木村直樹
2. 発表標題	電子ビームイオントラップを用いたPd 様多価イオンのレーザー分光
3. 学会等名	第7 回精密計測を元に科学技術に変革をもたらす回路技術調査専門委員会 (招待講演)
4. 発表年	2021年

1. 発表者名	廣田彩音, 伊五澤涼, ○木村直樹, 久間晋, P. M. Mishra, K. Chartkunchand, M. Lindley, 山口貴之, 中野祐司, 東俊行
2. 発表標題	極低温静電型イオン蓄積リングRICEを用いた $N20+$ の輻射振動冷却IV
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	Priti, Naoki Kimura, Ryunosuke Kodama, Naoki Numadate, Nobuyuki Nakamura
2. 発表標題	Analysis of the energy dependence of the emission lines in Rh- to Cd-like ions through CR Modeling
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 木村直樹, 廣田彩音, 伊五澤涼, 久間晋, P. M. Mishra, K. Chartkunchand, M. Lindley, 山口貴之, 中野祐司, 東俊行
2. 発表標題 極低温静電型イオン蓄積リング RICE で探る三原子分子 N ₂ O ⁺ の冷却ダイナミクス
3. 学会等名 原子衝突学会第45回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木村直樹, Priti, 児玉龍之介, 沼舘直樹, 中村信行
2. 発表標題 長寿命準安定準位がプラズマ中の電離平衡に与える特異性
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〕

理化学研究所 東原子分子物理研究室 https://amo.riken.jp/
--

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
---------	---------