

平成 30 年 9 月 12 日現在

機関番号：32686

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13859

研究課題名(和文) 極低温リングで実現する孤立分子イオンの輻射冷却リアルタイム観測

研究課題名(英文) Real-time observation of radiative cooling of isolated molecular ions in RICE

研究代表者

中野 祐司 (NAKANO, Yuji)

立教大学・理学部・准教授

研究者番号：20586036

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、蓄積リングRICEにおける分子イオン蓄積および、中性粒子検出システムの開発、分光用レーザーのセットアップを行い、分子イオンの回転分光を行った。N₂O⁺分子のA₂ + X₂ 2/3 (000)-(200)遷移にともなう中性解離片を検出することで回転分光スペクトルが計測され、時間とともに回転状態分布が刻々と変化する様子を観測することに成功した。

研究成果の概要(英文)：An in-ring predissociation spectroscopy of N₂O⁺ molecular ions, A₂ + X₂ 2/3 (000)-(200), has been carried out in the RIKEN Cryogenic Electrostatic ring (RICE). With the use of a dedicated detection system, rotational spectra of N₂O⁺ were observed at different storage periods of from 250 microseconds to about 1 second. The real-time observation of rotational population distribution was successfully attained, and the change of rotational temperature was measured by comparing the experimental result to numerical simulations using the pgopher code.

研究分野：原子分子物理

キーワード：イオン蓄積リング 輻射冷却 回転分光 前期解離

1. 研究開始当初の背景

気相化学反応において分子の内部エネルギーは、反応の速度・経路を支配する重要な要因である。分子に付与された内部エネルギーは、電子励起や解離などに消費されるほか、振動・回転自由度に等分配され、輻射によって徐々に外部に放出される。天文学において、このような輻射の計測は分子を観測する重要な手段であり、分光学的手法による分子構造の決定は、星間分子の発見や、星形成プロセスの解明などに重要な役割を果たしてきた。

最近になってイオン蓄積リングを利用した高温分子の初期冷却ダイナミクス研究が活発になり、各所でハイライトされるなど注目を集めている。内部エネルギーの減少レートが特異的に早い例や、星間炭素鎖分子における輻射冷却と償却冷却の競合などが実験的に観測されている。しかし現在の研究手法は、室温環境において内部エネルギー変化を解離や電子脱離プロセスとして間接的に観測することにとどまっており、振動・回転状態分布が時間とともにどう変化するかについては、詳しく検証されていない。

2. 研究の目的

本研究では、孤立分子の輻射冷却ダイナミクスをより直接的、定量的に解明することを目指す。振動・回転分布の時間変化を、レーザー分光によって刻々と追跡して観測することにより、冷却の最中の分子の振動・回転状態分布がどのように時間変化していくのかをリアルタイムに観測する。また、孤立環境で冷却された分子の内部状態分布を検証し、熱平衡を前提とした統計モデルの妥当性を検証する。

3. 研究の方法

研究は2カ年計画で、理化学研究所の極低温イオン蓄積リング RIKEN Cryogenic Electrostatic ring (RICE) を利用して実施する。電子サイクロトロン共鳴 (ECR) イオン源に比較的高圧力 (10^{-2} ~ 10^{-1} Pa) で試料ガスを導入し、数 W 程度の微弱マイクロ波を導入する。これによりごく低温のプラズマを生成し、分子イオンを壊さずに電離し、10 keV 程度のイオンビームとして引き出す。これを RICE に入射し、蓄積し、色素レーザーを用いた回転分光によって回転状態分布を直接観測する。まずは単純な直線分子である亜酸化窒素分子イオン (N_2O^+) を対象とし、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X_2\Pi^{2/3} (000)-(200)$ 遷移にともなう解離片を検出することで吸収分光を行う。

また、既知の分光定数から PGOPHOR コードを用いて分子内部温度に応じた吸収スペクトルのシミュレーションを行い、観測結果と比較する。これにより分子温度を推定するとともに、特に非平衡状態での分布に注目してその時間変化を追う。

4. 研究成果

本研究では、蓄積リング RICE における分子イオン蓄積および、中性粒子検出システムの開発、分光用レーザーのセットアップを行い、 N_2O^+ 分子の回転分光を行った。目的とした分光スペクトルの計測に成功し、シミュレーションと比較して分子温度の推定を行った。長時間蓄積におけるデータは統計が十分ではないものの、時間とともにスペクトルが変化する様子が観測できている。以下に研究成果の概要を報告する。

(1) 分子イオンビームの生成と蓄積

N_2O を試料ガスとし、ECR イオン源で N_2O^+ イオンビームの生成を行った。図 1 (上) はイオン源内のガス圧力を 5×10^{-5} mbar に保ち、入力マイクロ波パワーを変化させた場合の質量分析スペクトルを示す。横軸は質量電荷比 m/q 、縦軸はビーム電流であり、 $m/q=44$ 付近のピークが N_2O^+ イオンに対応する。マイクロ波のパワーを上げるにしたがってイオン源内で分子の解離がすすみ、イオンビーム強度が下がって行く様子が観測された。図 1 (下) はマイクロ波パワー 5 W の条件下で試料ガスの圧力を変化させたときの質量分析スペクトルであり、ガス圧を上げるにつれて高いビーム強度が得られた。

生成した 10 keV の N_2O^+ イオンビームを RICE に入射し、蓄積モードの調整を行った。入射時のビーム強度はおおよそ 10 nA 程度であり、10 分以上の長時間にわたり、安定に蓄積することができた。同様に、本研究で対象とする C-H 系分子、O-H 系分子種についても、十分な強度のイオンビームを生成することができた。

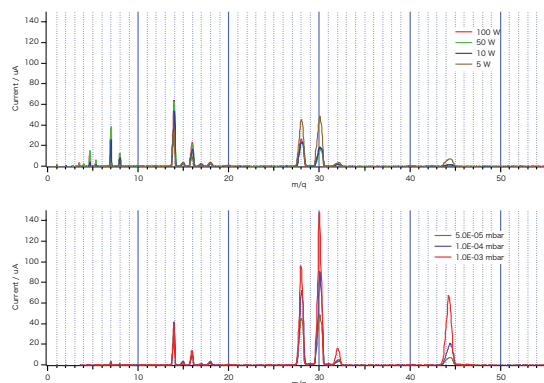


図1: ECR イオン源で生成したイオンビームの質量分析スペクトル。上は一定圧力下でのマイクロ波パワー依存性、下はマイクロ波パワーを固定した条件下での試料ガス圧依存性を示す。横軸は質量電荷比。

(2) 中性粒子検出器の開発

本実験では、レーザーによって前期解離した中性の窒素原子を、RICE 直線部の延長線上に設置した検出器で検出する。このとき中性原子はレーザー光と同軸上に飛んでくるため、レーザー光と中性原子を分離して観測するための中性粒子検出器の開発を行った。

図2に示すように、検出器は鏡面研磨されたアルミ製ダイノードと、2次電子増倍管 (CEM) によって構成される。アルミニウムは短波長領域においても高い反射率を保つため、本研究で用いる紫外レーザー光はほぼ全反射し、人工石英窓を通じて真空チャンパー外へと出て行く。他方、中性粒子がダイノード当たるとアルミ表面から2次電子が放出されるため、これを対面するCEMへ向けて加速することで、信号を検出した。データ収集に際して、図2(b)に示すようなレーザーQスイッチをトリガーとした時間分解計測システムを構築することにより、レーザー光によるノイズ信号を除去することができた。

リング内に蓄積されたビームは、一定の確率で残留ガスから電子を捕獲して中性化する。開発した中性粒子検出器を用いて、イオンビーム強度の減衰を測定し、通常用いるマイクロチャンネルプレート (MCP) による測定結果と矛盾しないことが確認された。また中性粒子検出器の信号雑音比 (S/N比) は、MCPのそれと比べて数倍良好な結果が得られた。これは、MCPの開口率が60%程度であるのに対して、中性粒子検出器のダイノードにおける二次電子放出係数が1より大きいことが要因である。さらにMCPに比べてCEMのバックグラウンド信号レートが低いことも寄与している。

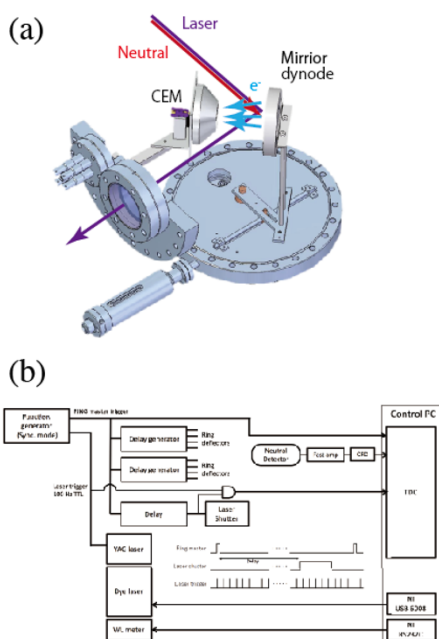


図 2: (a) 本研究で開発した中性粒子検出器の概略図。レーザーと中性原子が同軸上でアルミ製ダイノードへ向かって飛んでくるが、レーザー光は全反射され、中性原子は二次電子を生成する。直線導入器により、ダイノードはビームライン上に出し入れが可能な機構となっている。(b) 中性粒子検出のタイミング制御の概要。マスターオシレータがRICEへのビーム入射と、レーザーのクロックを同期させている。レーザーQスイッチと、レーザーシャッターのAND信号を計測トリガとすることで、任意のタイミングのレーザー照射に対して中性原子を計測することが可能である。

(3) N_2O^+ 分子イオンの回転分光

10 keV の N_2O^+ 分子イオンビームをRICEに蓄積し、レーザー分光実験を行った。光源には狭線幅の色素レーザー (DCM 色素・エタノール溶媒) を用いて波長 650 nm 付近の光を取出し、その2倍波を利用した。研究開始当初はポンプ用光源として 10 Hz 繰り返しのNd:YAGレーザーを利用していたが、データ統計量の向上のため、期間途中より 100 Hz 繰り返しのダイオードポンプ型Nd:YAGレーザーへとアップグレードした。

図3は中性粒子検出器で得られた中性粒子のカウント数を示す。横軸はビーム入射からの時間である。ビームの周回ごとに残留ガスとの衝突によって生じた中性粒子が検出されており、その強度は指数関数的に減衰している。入射からおよそ 250 μ 秒後にレーザーを照射したところ、レーザーによる光電子が検出され、さらに約 10 μ 秒に N_2O^+ 分子の $A^2 \Sigma^+ \leftarrow X_2 \Pi^{2/3} (000)-(200)$ 遷移にともなう中性解離片が検出されている。この中性解離片の検出される時間窓の信号を積算し、レーザー波長の関数としてプロットすることにより、回転分光スペクトルを得ることに成功した。

得られたスペクトルはシミュレーションと非常に良く一致し、分子温度は 410 K 程度と見積もられた。すなわち、RICE内は低温 (4.2 K) であるにも関わらず、測定された分子温度は室温 (300 K) より高い値であった。これは、周囲環境と熱平衡数に達するまでにはより長い時間が必要であることを示している。同様に蓄積時間を 1 ms, 9 ms, 90 ms, 900 ms と伸ばし、回転スペクトルを測定したところ、スペクトル形状が変化していく様子が見られた。詳細な解析は現在進行中であるが、研究目的としていた回転状態分布のリアルタイム観測は達成できた。

ここまでの成果は国際会議の招待講演としても発表したほか、プロシーディングス 1 報 (Y. Nakano et al., submitted to JPS Conference Proceedings) を投稿した。

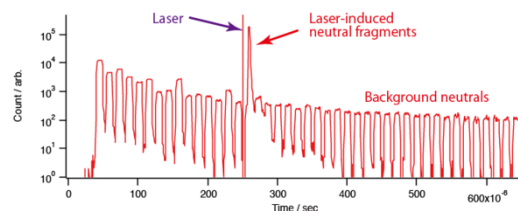


図 3: RICE に 10 keV の N_2O^+ 分子を蓄積した際の中性粒子カウント数。横軸は入射からの時間。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① Y. Nakano, Y. Enomoto, T. Masunaga, S.

Menk, P. Bertier, and T. Azuma,
“Design and commissioning of the
RIKEN cryogenic electrostatic ring
(RICE)”, 査読有り
Rev. Sci. Instrum. 88, 33110 (2017).

[学会発表] (計 18 件)

- ① [ポスター] “合流ビーム実験による低速イオン・中性衝突実験”, 飯田進平, 中野祐司
第 7 回イオン移動度研究会, 2018/4/14
立教大学
- ② [口頭] “合流ビーム実験に向けた中性ビーム源の開発”, 飯田進平, 東俊行, 中野祐司, 日本物理学会第 73 回年次大会, 2018 年 3 月 22-25 日, 東京理科大学野田キャンパス
- ③ [ポスター] “超伝導カロリメータを用いた低温下の星間分子計測実験(1)”, 山田真也, 岡田信二, 東俊行, 久間晋, 中野俊男, D. A. Bennett, W. B. Doriese, J. W. Fowler, J. Hays-Wehle, G. Hilton, G. C. O’Neil, C. D. Reintsema, D. R. Schmidt, D. S. Swetz, J. N. Ullom, 橋本直, 早川亮大, 一戸悠人, 石崎欣尚, 中野祐司, 竜野秀行, 野田博文, 上田周太郎, 日本天文学会 2018 年春季年会, 2018/3/14-17, 千葉大学西千葉キャンパス.
- ④ [口頭] “極低温静電型イオン蓄積リング RICE 中で輻射冷却された N₂₀⁺の回転分光”, 伊五澤涼, 山口貴之, 中野祐司, 久間晋, 東俊行, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017/9/21-24, 岩手大学.
- ⑤ [口頭] “分子検出に向けた多素子 TES マイクロカロリメータの性能評価”, 岡田信二, 東俊行, D. A. Bennett, W. B. Doriese, J. W. Fowler, 橋本直, 早川亮大, J. Hays-Wehle, G. Hilton, 一戸悠人, 石崎欣尚, 久間晋, 中野俊男, 中野祐司, 野田博文, G. C. O’Neil, C. D. Reintsema, D. R. Schmidt, D. S. Swetz, 竜野秀行, 上田周太郎, J. N. Ullom, 山田真也, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017/9/21-24, 岩手大学.
- ⑥ [ポスター] “合流ビーム実験に向けた中性原子の開発”, 飯田進平, 根本拓海, 菅沢卓也, 林遼平, 長岡諒祐, 大森徹也, 江淵欣久, 中野祐司, 原子衝突学会第 42 回年会, 2017/9/8-9, 上智大学
- ⑦ [ポスター] “極低温型イオン蓄積リング RICE を用いた N₂₀⁺の回転スペクトル測定”, 伊五澤涼, 山口貴之, 中野祐司, 久間晋, 東俊行, 原子衝突学会第 42 回年会, 2017/9/8-9, 上智大学.
- ⑧ [ポスター] “多素子超伝導遷移端マイクロカロリメータの中性分子質量分析応用”, 岡田信二, 東俊行, D. A. Bennett, W. B. Doriese, J. W. Fowler, 橋本直, 早川亮大, J. Hays-Wehle, G. Hilton, 一戸悠人, 石崎欣尚, 久間晋, 中野俊男, 中野祐司, 野田博文, G. C. O’Neil, C. D. Reintsema, D. R. Schmidt, D. S. Swetz, H. Tatsuno, S. Ueda, J. N. Ullom, S. Yamada, International conference on exotic atoms and related topics (EXA2017), 2017/9/11-15, Wien, Austria.
- ⑨ [ポスター] “Cryogenic detector for mass spectrometric identification of neutral molecules towards atomic and molecular collision experiments”, S. Okada, T. Azuma, D. A. Bennett, W. B. Doriese, J. W. Fowler, T. Hashimoto, R. Hayakawa, J. Hays-Wehle, G. Hilton, Y. Ichinohe, Y. Ishisaki, S. Kuma, T. Nakano, Y. Nakano, H. Noda, G. C. O’Neil, C. D. Reintsema, D. R. Schmidt, D. S. Swetz, H. Tatsuno, S. Ueda, J. N. Ullom, S. Yamada, International conference on exotic atoms and related topics (EXA2017), 2017/9/11-15, Wien, Austria.
- ⑩ [招待講演] “Cryogenic ion storage ring RICE for atomic and molecular physics”, Y. Nakano, The 10th International Conference on Nuclear Physics at Storage Rings (STORI’ 17), 2017/11/13-18, Kanazawa, Japan.
- ⑪ [ポスター] “Transition-edge-sensor microcalorimeters for mass spectrometric identification of neutral molecules”, S. Okada, T. Azuma, D. A. Bennett, W. B. Doriese, J. W. Fowler, T. Hashimoto, R. Hayakawa, J. Hays-Wehle, G. Hilton, Y. Ichinohe, Y. Ishisaki, S. Kuma, T. Nakano, Y. Nakano, H. Noda, G. C. O’Neil, C. D. Reintsema, D. R. Schmidt, D. S. Swetz, H. Tatsuno, S. Ueda, J. N. Ullom, S. Yamada, International workshop on low temperature detector (LTD17), 2017/7/17-21, Fukuoka, Japan.
- ⑫ [ポスター] “Commissioning of a new cryogenic ion storage ring RICE”
Y. Nakano, Y. Enomoto, T. Masunaga, S. Menk, P. Bertier, and T. Azuma,
30th International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC XXX), 2017/7/26-8/1, Cairns, Australia.
- ⑬ [口頭] “イオン蓄積リング RICE における回転分光”, 中野祐司, Matthew Lindley, 久間晋, 東俊行, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017/3/17-21, 大阪大学.
- ⑭ [招待講演] “Development of RICE”, Y. Nakano, 6th International Workshop on Electrostatic Storage Devices,

- Tokyo 2017/6/19-22, Lyon, France.
- ⑮ [ポスター] “イオン蓄積リングRICEにおけるN₂O⁺イオンの回転分光”, 中野祐司, Matthew Lindley, 久間晋, 東俊行, 原子衝突学会第41回年会, 2016/12/10-11, 富山大学, .
- ⑯ [ポスター] “Resonant coherent excitation of the electron-cooled U89⁺ beam from ESR”, Y.Nakano, A. Bräuning-Demian, A. Ananyeva, S. Menk, H. Bräuning, C. Kleffner, Th. Stöhlker, T. Azuma, 原子衝突学会第41回年会, 2016/12/10-11, 富山大学, .
- ⑰ [口頭] “A laboratory experiment of interstellar molecular reaction at RIKEN Cryogenic Electrostatic ring (RICE)”, Y.Nakano, International Workshop on Interstellar Matter, 2016/10/19-20, Sapporo, Japan.
- ⑱ [招待講演] “Recent results from the RIKEN electrostatic storage ring project”, Y.Nakano, International Workshop on Research Opportunities at Cryogenic Electrostatic Storage Rings, 2016/5/19-20, 2016, Heidelberg, Germany.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

<http://www2.rikkyo.ac.jp/web/nakano/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中野 祐司 (NAKANO, Yuji)
立教大学・理学部・准教授

研究者番号：20586036

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

久間 晋 (KUMA, Susumu)

理化学研究所・

東原子分子物理研究室・研究員

研究者番号：50600045