

令和元年5月30日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2014～2018

課題番号：26220607

研究課題名(和文) 極低温静電型イオン蓄積リングが拓く極限科学：宇宙化学から放射線生物学までの展開

研究課題名(英文) Interdisciplinary science explored by cryogenic electrostatic storage ring:
from astrochemistry to radiation biology

研究代表者

東 俊行 (AZUMA, TOSHIYUKI)

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・主任研究員

研究者番号：70212529

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 148,900,000円

研究成果の概要(和文)：極低温静電型イオン蓄積リング装置を使って、極低温、極高真空という環境下で原子分子イオンを1000秒以上の長時間周回蓄積させることが可能になった。周回イオンに波長可変紫外レーザー光を合流させて詳細な孤立分子イオンの振動回転スペクトルを観測し、長時間にわたる冷却ダイナミクスを探索できるようになった。蓄積のための大型分子、クラスターイオン、さらに或いは蓄積イオンと衝突させる中性粒子を高速パルスビームとして生成することにも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

極低温・低エネルギー領域の孤立量子系のエネルギー緩和過程は統計力学的ダイナミクスに量子力学的な寄与が加わる興味ある研究対象であり、真空中で黒体放射が無視できる環境において1000秒以上もの長い時間にわたって詳細に脱励起過程を観測できる測定装置を作り上げたことの意義は大きい。宇宙における分子の化学進化を模擬する地上実験として重要であるばかりでなく、この装置は対象とする分子イオンの質量の制限を受けないため極めて適応範囲が広く、本研究によって得られた結果を今後大型生体分子イオンに展開することにより放射線照射効果を追跡する格好の道具を提供できた。

研究成果の概要(英文)：Using a cryogenic electrostatic ion storage ring device, it has become possible to accumulate atomic and molecular ions for a long period of 1000 seconds or more under an environment of extremely low temperature and high vacuum. By introducing a tunable UV laser to accumulated isolated molecular ions, we observed the detailed rotational and rotational spectra of them, which enabled us to explore cooling dynamics over a long period of time. We also succeeded in generating fast pulsed beams of large molecular and cluster ions for their accumulation, and neutral particles for collisions with accumulated ions.

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：イオンビーム 励起・脱励起ダイナミクス 原子分子衝突

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景



図1 極低温静電型イオン蓄積リング内部の電極群

イオン蓄積リングは、高エネルギー物理や核物理の実験においてイオンビームの強度や品質を向上させるために開発された加速器科学における大型装置である。ところが、磁場を使わずにすべてを静電的に制御することによって、周回蓄積イオンの質量と無関係に同一条件下で運転できる静電型イオン蓄積リングが近年登場した。これにより、イオン蓄積リングでは全く取り扱われたことのなかった重いイオン、すなわち多原子分子イオン、クラスターイオン、さらには生体分子イオンまでが原理的に周回蓄積可能となった。我々は、装置の大きさを磁場の場合より遥かに小型化できる利点を活かして、装置全体を極低温(5K)、極高真空(10^{-15} Torr) 環境下に設置し、大きさや質量数に制限されない冷却原子分子イオンを長時間周回させることができるテーブルトップサイズの静電型イオン蓄積リング(図1)を開発した。

静電型イオン蓄積リング RICE の特徴は、1) 多彩な原子分子イオンを極低温という環境下で、振動回転状態を制御しながら数分から数10分という長い時間スケールで真空中に孤立させて用意できること、2) 10-20keV という一定のエネルギーを保持して周回しているため、リング内で蓄積イオンが衝突や反応を起こした時に生成する粒子を高効率かつ容易に検出できること、3) さらに分子の個性が明確に現れるエネルギー差が小さい低速衝突ダイナミクスの研究に最適であり、衝突相手の粒子ビームを合流させ相互の速度差を変化させることによりエネルギーの関数としての反応確率すなわちエネルギー微分断面積の測定が可能であることが挙げられる。本研究では、加速器技術、光技術を原子分子物理実験に適用することにより、本装置を基盤として周辺の装置を開発し、宇宙・化学・生物分野への新しいビーム科学の展開の基礎づくりを目指した。

2. 研究の目的

3. 研究の方法

(1) 分子イオンの回転分光

リング周回軌道の途中には直線部分を設け、波長可変 OPO レーザー及や色素レーザーを駆使した振動回転分光を行うとともに、そのスペクトルの蓄積時間に依存した変化を追跡することによって準安定状態や脱励起過程を探求する。周囲温度 5K の環境下に分子イオンを長時間蓄積する間、分子イオンは赤外輻射によってその内部エネルギーを放出し、振動・回転基底状態へと緩和していく。この冷却過程をリアルタイムに観測するために、具体的には N_2O^+ 分子イオンを用いて時間分解回転分光実験を実施した。ナノ秒波長可変パルスレーザー (Cobra Stretch, Sirah; dye DCM) の二倍波

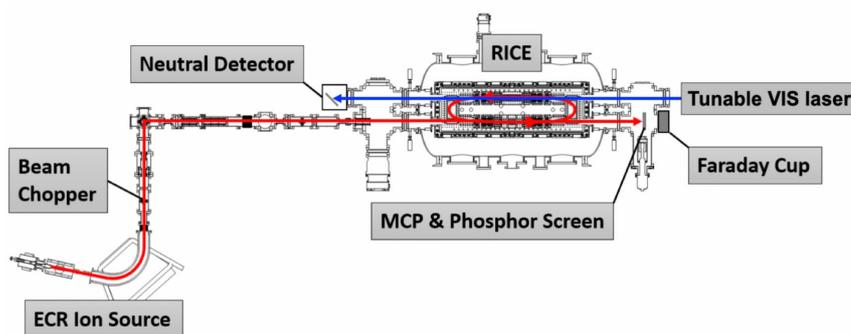


図2 RICE 光解離実験スキーム。イオンビームとレーザーの軌道を示す。

を用いて、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ ($\Delta v_1 = 2$) 遷移後の $NO^+ + N$ への前期解離で生成される N 原子を中性粒子検出器で測定することで、いわゆる action spectroscopy を行った。ECR (電子サイクロトロン共鳴) イオン源で生成された N_2O^+ イオンは、10 kV の電場で加速した後、磁場により質量選別した上でリングに導入された。リング直線部にレーザー光を導入し、直線軌道延長軸上に設置した中性粒子検出器にて生成フラグメントを検出した(図2)。当初、レーザー光源は 10Hz で運転していたが、100Hz の高繰り返し YAG レーザーを用いた光源へアップグレードし、長時間におよぶ蓄積に対しても効率よく分光が行えるように対応した。

(2) 蓄積のための様々な高速分子イオンビーム開発

対象とする周回イオンを生成するため様々なタイプのイオン源を導入した。特にエレクトロスプレーイオン源(ESI)によって生成した大型分子イオンは、リングに導入する前に用意された極低温 RF 型イオントラップで予め冷却し、かつ個数を増大させた後パルス状に加速して RICE へ導入するビームを生成した。またレーザーアブレーションイオン源によってクラスターイオンビームも生成した。

(3) 合流用中性ビームの開発

宇宙における分子化学進化で重要な役割を果たす、イオンと中性粒子との低エネルギー合流衝突実験を実現するため中性粒子ビームを開発した。そのために、イオン源から取り出し加速した負イオンをレーザーによって電子脱離することによって中性ビームを作り出した。

(4) 超流動ヘリウム液滴による極低温分子イオン生成

超流動ヘリウムナノ液滴を用いたマトリックス分光法は、これまで多様な分子やそのクラスターに適用され、ヘリウム液滴の超流動性や極低温環境 0.4 K に由来する興味深いスペクトルを提供してきた。しかしこれまでの研究対象は主に中性分子に限られている。我々は、この分光法を分子イオンへ応用し、極低温イオン分光を展開するための実験を開始した。ヘリウム液滴は温度 20 K 以下に冷却したヘリウムガスを高真空空間に噴出することで生成される。断熱膨張-凝集-蒸発冷却の過程で温度 0.4 K まで冷却されたナノサイズのヘリウム液滴には、衝突により分子を内包させることが容易であり、その内包分子もまた 0.4 K まで冷却される。本研究ではパルスノズルを用いて $10^6 \sim 10^{11}$ 個のヘリウム原子からなる液滴を生成した。イオン化には、ナノ秒パルスレーザーからの二色の光を利用した二光子共鳴イオン化を用いた。液滴ビーム下流に設置したダイノード付き電子増倍管により、生成イオン及びイオン化の際の光電子の検出が可能である。

(5) 中性フラグメントビーム検出法の開発

① レーザービームと同軸に進行する中性フラグメントの観測

リング直線部を通過する原子分子イオンビームとレーザー光を高効率で相互作用させるためには、ビームと同軸にレーザー入射するコリニア法が適している。しかし、レーザー光照射によって原子分子イオンから生じた中性フラグメントが、レーザー光と同軸に飛行してくる。この状況下でレーザー光および中性粒子を分離して観測するために、独自の検出法の開発を行った。

② 中性フラグメントの観測のための超伝導カロリメータの開発

上述の手法では中性フラグメントの種類を判別することは不可能である。そのために中性生成粒子の運動エネルギーを直接検出することのできるエネルギー分散型粒子検出器である超伝導遷移端センサー (TES) をマイクロカロリメータとして利用する研究開発を進めた。

4. 研究成果

(1) 分子イオンの回転分光

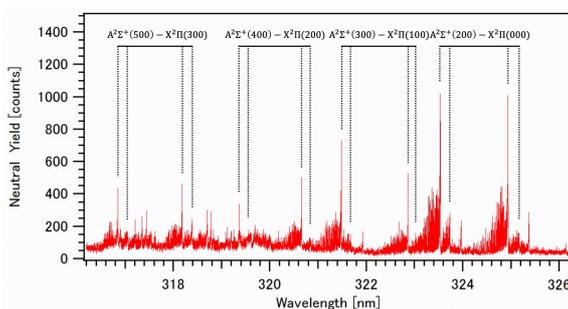


図 3 N_2O^+ イオン 8.5 μs 蓄積後の $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ 前期解離スペクトル。対称伸縮モードの $\Delta v_1 = +2$ シークエンスに由来する回転バンド構造が観測された

N_2O^+ イオンをリングに導入し 8.5 μs 蓄積後に測定した前期解離スペクトルを図 3 に示す。対称伸縮モードの $\Delta v_1 = +2$ シークエンスの各々は、まず基底状態 $^2\Pi$ のスピン-軌道相互作用による分裂 (130 cm^{-1}) が見られる。その各々は 2 つのバンドヘッドをもつ。各振動遷移収量の蓄積時間依存性から、秒オーダーで振動基底状態の占有率が増加することが明瞭に観測された。これは振動遷移における自然放出を通じた輻射冷却によるものであり、このような観測は蓄積リングを用いた本手法でのみ実現できた成果である。

さらに、図 4(a) に蓄積時間 9 ms の時点で測定したスペクトルのうち、基底状態 $^2\Pi_{3/2}$ からの 1_0^2 遷移の前期解離スペクトルを示す。 N_2O^+ の $A^2\Sigma^+$ 状態における前期解離では、解離効率が回転状態に依存しないため、スペクトルから基底状態の占有数分布が推定可能である。図 4(b) に示すように、観測結果はボルツマン分布を仮定したスペクトルシミュレーションと非常に良い一致を示した。我々はフィットから回転温度を 300 K と評価し、またいくつかの分光定数を決定した。同様の測定を蓄積時間最大 200 s まで行い、シミュレーションとの比較から回転

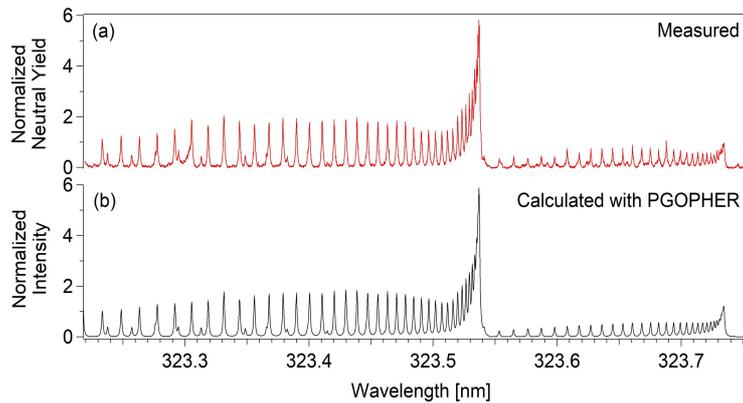


図 4 (a) N_2O^+ イオン 9 ms 蓄積後の $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2} 1_0^2$ スペクトル
 (b) 回転温度 300 K でのボルツマン分布を仮定したシミュレーション

温度を評価した。その結果、蓄積時間 200 s でも回転状態占有数分布を得ることが可能なほど高感度な解離スペクトルの測定に成功した。一方、回転温度は 300 K から有意な減少を示さず、回転輻射冷却の遅さを反映した結果となった。これは、回転自然放出と 4 K 輻射環境における誘導放出・励起を含めたレート方程式による冷却過程シミュレーションでも再現される結論である。

(2) 蓄積のための様々な高速分子イオンビーム開発

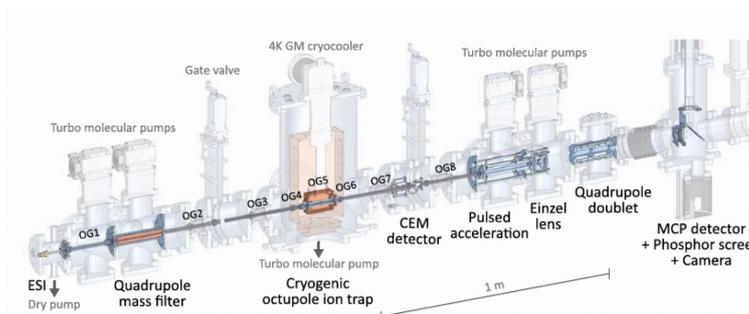


図 5 ESI、極低温イオントラップ、加速用電極で構成されるパルス化高速大型イオンビーム生成装置

図 5 に示すような RICE へ導入する冷却大型分子生成装置を開発した。これは、エレクトロスプレーイオン源 (ESI)、4 重極質量フィルター、8 重極の電極間にさらにフィン型補正電極を追加した極低温 RF イオントラップ、および加速装置によって構成され、バンチ化された冷却イオンを RICE に導入した。イオン

トラップによって個数を増大させ、かつ予め冷却したイオンをリングに導入できるため、長い冷却時間を必要とする大きな分子イオンに対して効果的であると期待される。典型例としてテストしたメチレンブルー色素分子イオンに関して、数 $10 \mu s$ 時間幅の 10-20 keV のパルス状イオンバンチ生成に成功した。

(3) 合流用中性ビームの開発

セシウムスパタイオン源 (SNICS II, National Electronics Corp.) から負炭素イオンビームを取り出し 8 kV に加速した後、質量分析マグネットおよび 4 重極レンズで構成されるビーム収束系、ステアラー、さらに縦横方向のスリットでビームを収束整形した。得られた強度 $2.0 \mu A$ の負炭素イオン高速ビームを出力 5 kW の 808 nm 大強度レーザーダイオードアレイによって電子脱離した。このダイオードレーザー (60 ダイオードで構成される) は発光面積が $100 mm \times 12 mm$ と大型であり、コリメータ実装後も角度広がり は $5 \text{度} \times 40 \text{度}$ 程度と大きい。出力 5 kW という大強度レーザーを集光してイオンビームに照射するという手法は世界初の試みであり、大型コンベックスシリンドリカルレンズを使用したレンズ系で $10 mm \times 1 mm$ に集光した。実際に 3 kW のレーザー出力時にシングルパスの条件で効率 4×10^{-4} で中性化ビーム生成に成功し、合流衝突用中性炭素ビームがほぼ完成した。なお、中性化効率を上げて中性ビーム強度を上げるため、3 個の矩形ミラーで三角を構成するレーザー増幅用キャビティを導入する試みを開始した。これにより多数回往復する光路を用意することで実効的レーザー強度を増幅できる。ここではミラーの損傷を防ぐため水冷によって一定の温度を保持するように設計されている。現在実験が進行中であるが、シミュレーションではおよそ 8 倍までの増幅が期待される。

(4) 超流動ヘリウム液滴による極低温分子イオン生成

まず、およそ 10^{11} 個のヘリウム原子からなる巨大な液滴の生成に初めて成功した。これは大型分子イオンをも内包させるのに十分なサイズである。さらにフタロシアニン分子を内包することを試みた。捕捉条件を確認するために、光電子増倍管を用いてレーザー誘起蛍光測定を行った。フタロシアニンはヒートセルを $380^\circ C$ に加熱することで準備されヘリウム液滴に捕捉され

る。波長可変ナノ秒 OPO レーザー (Sunlite EX, Continuum) を光源として観測した $15,088.9 \text{ cm}^{-1}$ にピークを持つ S_1 - S_0 励起スペクトルは、フタロシアニンが液滴内部に捕捉され、振動状態が十分冷却された基底状態にあることが明らかになった。その後、二光子共鳴イオン化に用いる光源の開発に着手した。フタロシアニンのイオン化ポテンシャルは気相では 6.40 eV と報告されているため、OPO レーザーに共鳴した S_1 状態からイオン化するための紫外光として、同期したナノ秒 Nd:YAG レーザーからの 532 nm 出力を二倍波 266 nm へ変換した。これまでに変換効率 40% 、 4 mJ のパルスを使って光イオン化実験に取り組む段階に到達した。

(5) 中性フラグメントビーム検出法の開発

① レーザービームと同軸に進行する中性フラグメントの観測

ビーム軸上に金属ミラーを設置することによりレーザービームと中性フラグメントを分離して観測した。すなわち、レーザーを金属ミラーで真空チャンバー外へ反射してフォトダイオードで観測する一方、中性粒子が入射した場合にはアルミ表面から 2 次電子が放出されるため、これを加速し対面のチャンネルトロンにて計測した。

② 中性フラグメントの観測のための超伝導カロリメータの開発

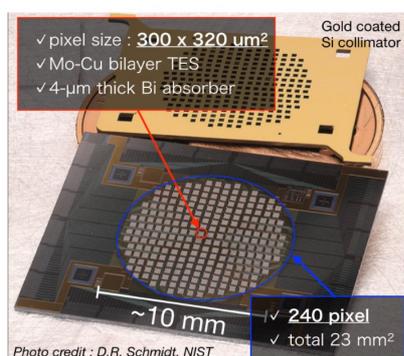


図 11 中性フラグメント識別用の TES 超伝導検出器

図 6 に示すような 200 ピクセルの多素子超伝導遷移端センサー (TES) を米国 NIST より導入した。本検出器は、入射粒子によって生じた吸収体における微量な温度上昇を、物質の常伝導から超伝導への急激な抵抗変化を利用し高感度で測定する熱量計である。これは従来、X 線を検出するために開発されたもので 240 素子から構成され有効面積 20 mm^2 を有し、分解能が 10 eV 以下の性能を持つ。従って 10 keV 程度の分子イオンが解離して生成する中性フラグメントを識別する能力を十分備えている。しかしながら、X 線用

には輻射遮蔽窓 ($5 \mu\text{m}$ 厚 Al) によって極低温 ($<100 \text{ mK}$) で動作させる。一方、中性フラグメントのためにはこれを取り払い、しかも検出器を低温に保持しなければならない。我々はこれを数層のパイプ状の断熱層を用意することで可能にし、実際に 10 keV の Ne 原子イオンを観測することに成功した。これを受けて 2019 年度中に超高真空の RICE へ接続するため、差動排気システムと組み合わせた熱輻射遮蔽システムによって中性フラグメントを観測する予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 10 件)

- ① S. Menk, P. Bertier, Y. Enomoto, T. Masunaga, T. Majima, Y. Nakano, and T. Azuma, A cryogenic linear ion trap beamline for providing keV ion bunches, Rev. Sci. Instrum. 89, 113110 (2018) DOI: 10.1063/1.5051044 査読有
- ② Y. Nakano, Y. Enomoto, T. Masunaga, S. Menk, P. Bertier, and T. Azuma, Design and commissioning of the RIKEN cryogenic electrostatic ring (RICE), Rev. Sci. Instrum. 88, 033110 (2017) DOI: 10.1063/1.4978454 査読有
- ③ S. Kuma and T. Azuma, Pulsed Beam of Extremely Large Helium Droplets, Cryogenics 88, 78-80 (2017) DOI: 10.1016/j.cryogenics.2017.10.016 査読有

〔学会発表〕 (計 81 件)

- ① T. Azuma, Excitation and De-excitation Dynamics of Matters: from Molecular Ions to Highly Charged Heavy Ions, 13th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP2018), 2018
- ② Y. Nakano, Development of RICE, 7th International Workshop on Electrostatic Storage Devices (ESD2017), 2017
- ③ T. Azuma, RIKEN's new cryogenic electrostatic ion storage ring for atomic and molecular physics: RICE, Trapped Charged Particles and Fundamental Physics 2014 (TCP2014), 2014

[その他]

ホームページ等

AMO Physics Laboratory, RIKEN

<http://www.riken.jp/amo/>

理化学研究所 東原子分子物理研究室

http://www.riken.jp/research/labs/chief/atom_mol_opt_phys/

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：金井 恒人

ローマ字氏名：(KANAI, tsuneto)

所属研究機関名：国立研究開発法人理化学研究所

部局名：東原子分子物理研究室

職名：専任研究員

研究者番号 (8桁)：00442947

研究分担者氏名：中野 祐司

ローマ字氏名：(NAKANO, yuji)

所属研究機関名：立教大学

部局名：理学部

職名：准教授

研究者番号 (8桁)：20586036

研究分担者氏名：久間 晋

ローマ字氏名：(KUMA, susumu)

所属研究機関名：国立研究開発法人理化学研究所

部局名：開拓研究本部

職名：研究員

研究者番号 (8桁)：50600045

研究分担者氏名：田沼 肇

ローマ字氏名：(TANUMA, hajime)

所属研究機関名：首都大学東京

部局名：理学研究科

職名：教授

研究者番号 (8桁)：30244411

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：MENK, sebastian

ローマ字氏名：(MENK, sebastian)

研究協力者氏名：岡田 信二

ローマ字氏名：(OKADA, shinji)

研究協力者氏名：山田 真也

ローマ字氏名：(YAMADA, shinya)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。