

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：32621

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23654144

研究課題名（和文）冷却イオントラップによる分子イオンの振動回転基底状態の生成と検出

研究課題名（英文）Production and detection of rovibrationally cold molecular ions using a cryogenic linear ion trap

研究代表者

岡田 邦宏 (OKADA KUNIHICO)

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号：90311993

研究成果の概要（和文）：分子イオンの振動回転基底状態への冷却が可能な小型冷却線形イオントラップを新たに開発した。本装置を用いることにより、約 50 K という低温環境において初めて $\text{Ca}^+ - \text{CaH}^+$ 混合クーロン結晶の大量生成に成功し、1 時間以上の閉じ込め時間を実現した。以上の結果から、室温で約 2% しか存在しない CaH^+ の回転基底状態の割合を約 13% にまで高めることができた。回転量子数 $J = 0 \sim 3$ までの低回転状態を含めると約 90% の占有率である。一方、本研究では、 CaH^+ イオンの電子状態間振動回転遷移分光のためのレーザーシステム及び蛍光検出系の開発も行った。本研究の成果により、並進温度及び振動回転温度が冷却された CaH^+ イオンの振動回転遷移分光を行う準備が整ったと言える。

研究成果の概要（英文）：We have developed a compact cryogenic linear ion trap to produce rovibrationally cold molecular ions embedded in an ion Coulomb crystal. First, the compact cryogenic linear ion trap with double radiation shields was newly developed and was connected to a 10 K cryocooler. Then, we performed laser cooling experiments of trapped Ca^+ ions. We have successfully generated Ca^+ Coulomb crystals containing more than a few thousands ions under low-temperature environments of about 50 K. We also succeeded in producing cold CaH^+ ions, which are generated by laser-induced reactions between $\text{Ca}^+ (^2P_{1/2})$ and H_2 molecules. A few thousands of cold CaH^+ ions are maintained over one hour under the low-temperature environments. The results imply that the population of the rotational ground state ($J = 0$) of CaH^+ is increased to 13%, while the room temperature population is only 2%. It is noted that in this condition the sum of $J = 0-3$ population reaches to 90% and the vibrational ground state is attained (the vibrational constant is about 0.18 eV). This is an important achievement to perform rovibrational spectroscopy of CaH^+ .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：原子・分子・量子エレクトロニクス

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：イオントラップ、クーロン結晶、分子イオン

1. 研究開始当初の背景

近年、基礎物理定数、とりわけ微細構造定数 α と陽子・電子質量比 $\beta = m_p / m_e$ の精密測定とその時間変化の研究に多くの関心が集まっている。その主な理由は、基礎物理定数

の時間変化の上限値が、今後構築されるであろう大統一理論のあり方の手がかりとなり得ることが理由である。また、加速器を駆使した巨大科学とは対照的な実験手法によって物理学の本質にせまることが可能である

ことや、測定の過程で得られる様々な情報や実験技術の重要性が、研究者に多大な関心を引き起こす理由である。

陽子-電子質量比 β の実験的検証の試みについては、多くの実験的提案がなされてきている。特に近年、 β の時間変化に対して高い感度をもつ分子イオンに関心が集まっている。最近情報通信研究機構の梶田らによって CaH^+ の振動準位間遷移の超精密振動遷移分光実験の提案がなされた[M. Kajita *et al.*, *J. Phys. B*42, 154022(2009)]。極低温の分子振動遷移分光によって到達可能な測定精度は、主としてゼーマン・シュタルク効果に対する感度によって制限されるが、 $^{40}\text{CaH}^+$ はそれらの効果による測定周波数の不確かさが非常に小さく($\sim 10^{-16}$)、 β の時間依存性の検証を行う上で非常に優れた系を提供することが示されている。分子イオンの並進温度をミリケルビンオーダーの極低温状態にし、さらに振動回転基底状態への冷却が達成できる方法が確立できれば、今後 β の時間依存性の検証を行っていくうえで重要な技術的貢献となる。一方、振動回転基底状態を様々な分子イオンで生成できれば、星間化学の実験的研究、特に極低温イオン-分子反応の反応速度測定を行う際の重要な技術的貢献につながるものと期待される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、クーロン結晶化した CaH^+ 分子イオンを冷却イオントラップ内に長時間閉じ込めることによって、それらの振動回転基底状態を生成することである。また、振動回転基底状態の生成を確認するために、 CaH^+ イオンの電子状態間振動回転遷移 $1^1\Sigma(v=0, J'') \rightarrow 2^1\Sigma(v=1, J')$ のレーザー励起による蛍光観測も目的とした。

3. 研究の方法

本研究では目的とする CaH^+ 分子イオンの振動回転基底状態を生成するために、環境温度を極低温に冷却できる線形イオントラップを準備する。冷却イオントラップ中で Ca^+ クーロン結晶を生成した後、 H_2 ガスを導入し、レーザー誘起反応 $\text{Ca}^+(^2P_{1/2}) + \text{H}_2 \rightarrow \text{CaH}^+ + \text{H}$ によって CaH^+ イオンを Ca^+ クーロン結晶中に生成する。冷媒である Ca^+ クーロン結晶により、 CaH^+ イオンの並進運動は十分に冷却され、やがて結晶化する。イオントラップの周囲は極低温冷凍機により十分に冷却されているため、イオンを長時間トラップし続けることで周囲との熱平衡状態が実現され、その結果、 CaH^+ の内部状態の冷却が実現する。振動回転

基底状態の生成を確認するために、 CaH^+ の電子状態間遷移 $1^1\Sigma \rightarrow 2^1\Sigma$ に相当する半導体レーザー(405 nm)を入射し、電子励起した CaH^+ イオンからの600 nm付近の蛍光を光電子増倍管によって検出する。

4. 研究成果

(1) 小型冷却線形イオントラップの開発

本研究では、まず小型冷却線形イオントラップを開発した。図1(左)は極低温冷凍機を含めた装置の全体図、図1(右)が冷却線形イオントラップ部の拡大図である。製作したイオントラップは、ロッド電極(直径 $\phi 5$ mm、長さ14 mm)とプレート電極から構成されている。イオントラップ周囲を極低温に維持するために、冷凍機の第一ステージ(38 K)及び第二ステージ(10 K)と熱接触させた2重の放射シールドでイオントラップ全体を囲む構造とした。

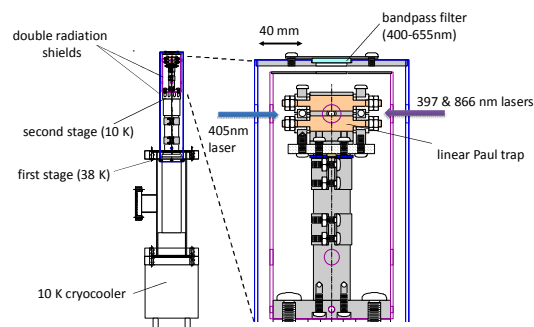


図1. 実験装置全体図(左)とイオントラップ部の拡大図(右)。

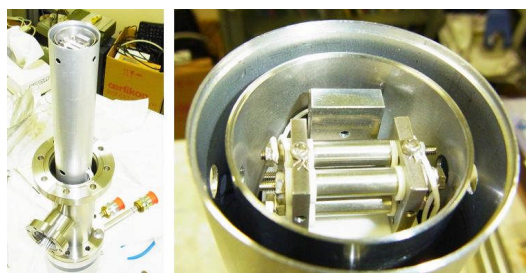


図2. 小型冷却線形イオントラップの写真。

レーザー誘起蛍光の観測窓にはバンドパスフィルターが取り付けられており、レーザー入射用アパーチャ($\phi 6$ mm)以外からの放射による熱流入を極力抑えるように工夫してある。図2に実際に製作した冷却イオントラップの写真を示す(バンドパスフィルター及び放射シールドの2つの上蓋を取外した状態で撮影)。

まず、冷却イオントラップの環境温度測定

を行った。図3に10 K 冷凍機動作開始直後からの環境温度の時間変化を示した。温度測定は、イオントラップのベースプレートに取り付けられたシリコンダイオードセンサーを用いて行った。図3に示す通り、70分後に環境温度は約50 Kに達した。目標とした10 Kには及ばなかったものの、室温では約2%しか存在しない CaH^+ の回転基底状態の割合を約13%にまで高めることが可能な環境温度である。また、回転量子数 $J = 0\sim 3$ までの低回転状態を含めると約90%の占有率を実現できる。

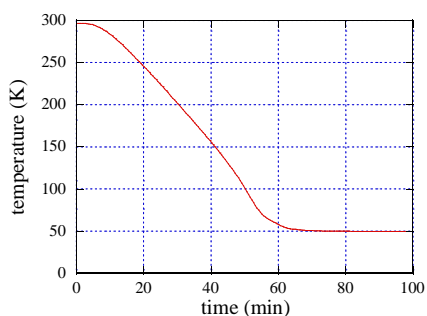


図3. 冷凍機動作直後から測定したイオントラップ環境温度の時間変化。

(2) 冷却イオントラップにおける Ca^+ クーロン結晶の生成とイオン温度測定

新たに開発した小型冷却イオントラップの動作確認を行うため、10 K 冷凍機を動作させた状態で Ca^+ のクーロン結晶生成実験を行った。極低温冷凍機の動作によって生じる微小振動がイオントラップへ伝わるため、 Ca^+ クーロン結晶の観測への悪影響が懸念されたが、結果として振動の影響は殆ど無視できることが確認された。図4は環境温度50 Kにおいてイオントラップ中で生成された Ca^+ クーロン結晶の蛍光を冷却 CCD カメラで撮影した画像である。結晶の内部構造が見えていることから、セキュラー温度は10 mK程度であると見積もられる[K. Okada *et al.*, Phys. Rev. A81, 013420 (2010)]。

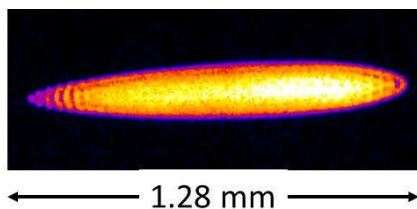


図4. Ca^+ クーロン結晶の蛍光画像。イオン数は 5×10^3 程度と見積もられる。

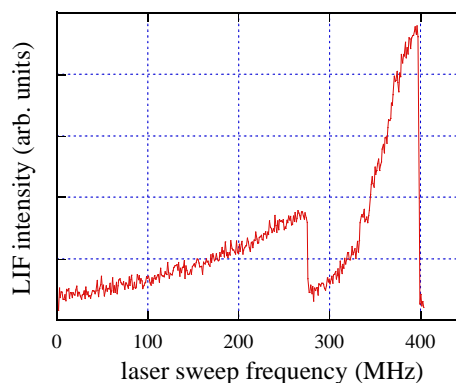


図5. レーザー冷却された Ca^+ の蛍光スペクトル。UV レーザーの相対周波数約280 MHz 付近にイオンのクーロン結晶化に伴う特徴的なディップがみられる。

イオンのマイクロモーションを含めた温度を見積もるため、図5に示すような Ca^+ レーザー誘起蛍光の周波数スペクトルを測定した。397 nm レーザー周波数を共鳴周波数に向かって掃引するとレーザー誘起蛍光の上昇がみられる。このとき、280 MHz 付近にクーロン結晶の生成に伴う特徴的なディップがみられることがわかる。このディップ後の蛍光スペクトルに自然幅(約11 MHz)を仮定したフォークト関数を最小二乗フィットすることで、ドップラー幅として約37 MHz (HWHM)を得た。その結果、マイクロモーションに伴う温度は約0.75 Kと見積もられた。以上の結果から、今回開発した小型冷却イオントラップにおいても数千個以上の十分なイオン数を含む Ca^+ クーロン結晶の生成が可能であることを確認することができた。

(3) 冷却イオントラップにおける Ca^+ - CaH^+ 混合クーロン結晶の生成と CaH^+ イオンの内部状態冷却

上述(2)の方法により冷却イオントラップ内に数千個程度の Ca^+ クーロン結晶を生成した後、レーザー誘起反応 $\text{Ca}^{+*} (^2P_{1/2}) + \text{H}_2 \rightarrow \text{CaH}^+ + \text{H}$ を利用して Ca^+ - CaH^+ 混合クーロン結晶を生成した。

図6には CaH^+ 生成過程において撮影された一連の Ca^+ クーロン結晶の蛍光画像を示した。反応時間とともに、クーロン結晶の上部が削り取られ、非対称な形状になっていることが分かる。これは、図7に示したように Ca^+ クーロン結晶の上部にレーザー誘起反応によって生成された CaH^+ が存在するためである[N. Kimura, K. Okada *et al.*, Phys. Rev. A83, 033422 (2011)]。クーロン結晶の半分以上が暗部となっていることから、少なくとも千個程度の CaH^+ が共同冷却されて存在していると

推定できる。なお、低温環境下における CaH^+ の大量生成はこれまで報告はなく、本研究において初めて行われたことを付記しておく。

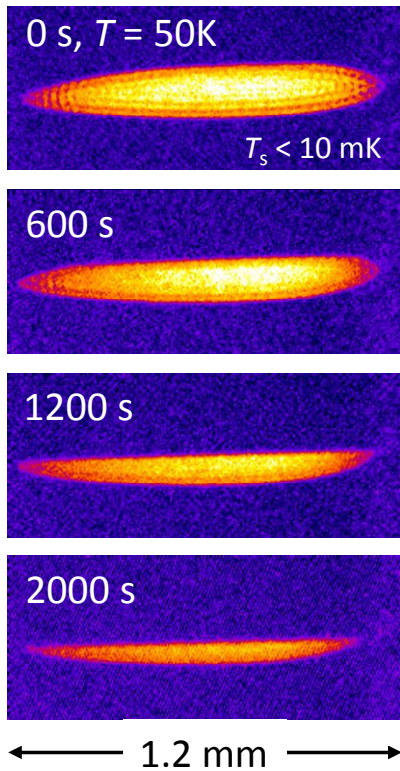


図 6. レーザー誘起反応による CaH^+ の生成過程で撮影された一連の Ca^+ クーロン結晶の蛍光画像。 $\text{Ca}^{+*} (^2P_{1/2})$ と H_2 との反応時間を画像中に示した。環境温度は 50 K である。反応時間 0 s におけるイオンの永年振動温度は 10 mK 以下と見積もられる。

(4) 振動回転基底状態 CaH^+ の電子状態間遷移励起による蛍光観測の試み

本研究では、 CaH^+ イオンの電子状態間遷移 $1^1\Sigma (v=0, J'') \rightarrow 2^1\Sigma (v=1, J')$ 分光のためのレーザーシステム及び蛍光検出系の開発を完了させた。レーザーは光帰還型半導体レーザー（中心波長 405 nm, 線幅約 1 MHz）を用いた。レーザーの発振波長はリトロ配置されたグレーティング角度を微調することで変化させた。

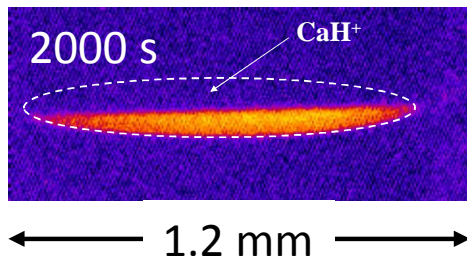


図 7. Ca^+ - CaH^+ 混合クーロン結晶の蛍光画像。結晶上部に CaH^+ イオンが数千個程度共同冷

却され、存在している。

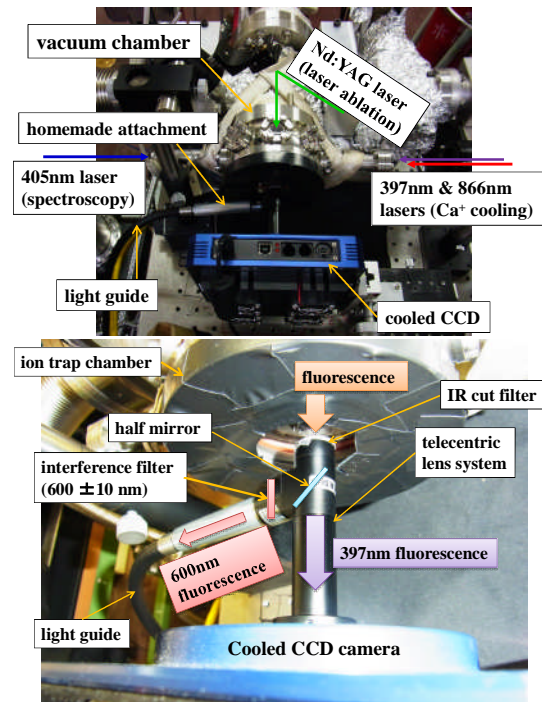


図 8. 実験装置全体（上）と蛍光検出系（下）の写真。

図 8 に実験装置全体及び蛍光検出系の写真を示す。レーザー誘起反応により生成し、振動回転状態が冷却された CaH^+ に 405 nm レーザーを照射して $1^1\Sigma \rightarrow 2^1\Sigma$ 遷移を励起し、理論的に予測されている 600 nm 付近の蛍光発光を観測する [M. Abe *et al.*, J. Phys. B43, 245102 (2010)]. 蛍光検出系のテレセントリックレンズ系の内部にはハーフミラーが取り付けられている。ミラーを透過した蛍光は冷却 CCD カメラに集光され、 Ca^+ クーロン結晶の蛍光画像として観測される。もう一方の蛍光は干渉フィルターに透過させて CaH^+ からの 600 nm 蛍光のみを取出し、ライトガイドにより光電子増倍管 (PMT) に導かれ、フォトンカウンティングモードで観測される。実験では分光用レーザーを波長計でモニターしながら 600 nm 蛍光信号の強度をマルチチャンネルスケラによって観測した。

図 9 に測定結果の一例を示す。分光用レーザーの波長を $\lambda = 405.066$ nm にセットし、時刻 $t = 0$ s に CaH^+ イオンにレーザーを照射した。このとき、PMT 信号はバックグラウンドと同様の値を示した。約 290 s のところで波長を $\lambda = 405.082$ nm に変化させたところ、一時的な蛍光の上昇が観測された。しばらくすると、強度はバックグラウンドよりもやや高い値で落ち着いた。そのあと、約 390 s に分光用レーザーを止めると PMT 信号はバックグ

ラウンドに戻る。約 460–590 s の間に再び $\lambda = 405.083 \text{ nm}$ のレーザーを入射すると PMT 信号が増加する様子が観測された。一方、730 s 付近で $\lambda = 404.744 \text{ nm}$ のレーザーを入射した場合は殆ど信号の増加が見られなかった。

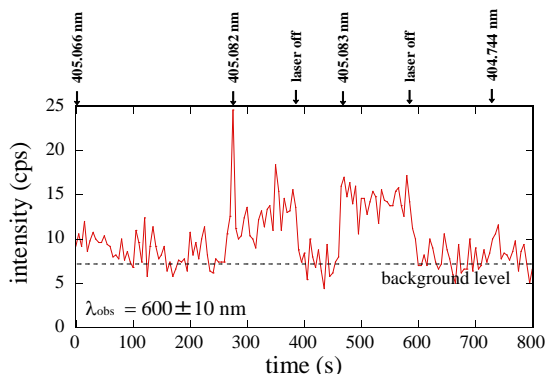


図 9. 冷却された CaH^+ イオンからの 600 nm 蛍光強度の時間スペクトル。

本研究において CaH^+ からのものと思われる蛍光信号を観測したが、確実に CaH^+ からの蛍光信号であることを示すためには、より高い信号強度のもとでレーザー周波数を掃引し、600 nm 蛍光の周波数スペクトルを測定する必要がある。PMT 信号の S/N 比をあげるためには以下の改善が必要と考えられる。すなわち、①現在よりも低温の環境に CaH^+ をトラップし、回転基底状態の占有率を増加させる、②蛍光検出系の改善、である。①を実現するために、イオントラップの配線を、より細く ($\phi 0.5 \text{ mm}$ 程度) 熱伝導率の低い材質(SUS)へ変更し、さらにレーザー入射用アパーチャ ($\phi 6 \text{ mm}$) に放射流入阻止用の光学フィルターを設置することを予定している。以上の対策により、イオントラップの環境温度として、20 K 程度までの冷却を達成させる。一方、②についてはレンズ系で用いられているハーフミラーの代わりに、397 nm で高透過率、600 nm 付近で高反射率をもつダイクロイックミラーを使用することで改善できる。また、レーザー光の散乱によるバックグラウンド低減のため、イオントラップへのレーザー入・出射前後に多段スリットを設けることも検討している。

(5) まとめ

本研究では新たに小型冷却線形イオントラップを開発し、低温環境における CaH^+ の生成に成功した。また、冷却された CaH^+ イオンのレーザー分光測定系を完成させ、実際に実験を行った。本研究で用いた手法によって、

並進温度と振動回転温度が冷却された大量の CaH^+ の生成が可能となり、それらの電子状態間振動回転遷移分光を行う準備が整った。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① K. Okada, T. Suganuma, T. Furukawa, T. Takayanagi, M. Wada, H. A. Schuessler, “Cold ion–polar-molecule reactions studied with a combined Stark-velocity-filter-ion-trap apparatus”, *Physical Review A* **87**, 043427 (2013) (14 pages). (査読有り)
- ② K. Okada, N. Kimura, T. Suganuma, K. Shiina, T. Furukawa, T. Takayanagi, M. Wada, and H. A. Schuessler, “Laser-induced reactions between a Ca^+ Coulomb crystal and polar molecules”, *Journal of Physics: Conference Series* Volume 388, 012025 (2012), doi:10.1088/1742-6596/388/1/012025 (6 pages). (査読有り)
- ③ “Laser-induced reactions between a Ca^+ Coulomb crystal and ammonia molecules”, N. Kimura, K. Okada, H.A. Schuessler, M. Wada, RIKEN Accelerator Progress Report 45, 178 (2012) (1 page). (査読無し)
- ④ “Stark velocity filter for producing slow polar molecules”, T. Suganuma, K. Okada, T. Takayanagi, S. Ohtani, H. A. Schuessler, M. Wada, RIKEN Accelerator Progress Report 44, 241 (2011) (1 page). (査読無し)
- ⑤ “Sympathetic crystallization of CaH^+ in a linear Paul trap”, N. Kimura, K. Okada, T. Takayanagi, S. Ohtani, H. A. Schuessler, M. Wada, RIKEN Accelerator Progress Report 44, xi (2011) (1 page). (査読無し)

[学会発表] (計 13 件)

- ① K. Okada, “Study of cold ion chemistry using ion traps”, One-day symposium on E-ring based molecular science, February 7, 2013, International House, Tokyo Metropolitan University (TMU), Tokyo (invited).
- ② K. Okada, “Cold ion chemistry using the ion trap technique”, Workshop on Interstellar Matter (ISM2012), Oct. 17-19, 2012, Hokkaido University, Japan (invited).
- ③ K. Okada, “Cold chemical reactions between sympathetically cooled molecular ions and slow polar molecules”, 19th International Mass Spectrometry Conference (IMSC2012), Sept. 15-21, 2012, Kyoto, Japan.
- ④ K. Okada, “Laser-induced reactions between a Ca^+ Coulomb crystal and polar molecules”, “Special Report” selected at XXVII

- International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2011), 27 July - 2 August 2011, Belfast, Northern Ireland, UK.
- ⑤ K. Okada, “Status and outlook: Sophia RF trap and collisions involving coulombic crystals”, 4th International Workshop on Electrostatic Storage Devices (ESD 2011), June 8-11, 2011 Gatlinburg, Tennessee, USA (invited).
- ⑥ 市川雅成, 古川貴浩, 和田道治, H. A. Schuessler, 岡田邦宏, 低速極性分子と共同冷却分子イオンの反応速度測定 II, 日本物理学会 2013 年第 68 回年次大会, 29aED-2, 広島大学, 2013 年 3 月.
- ⑦ K. Okada, T. Furukawa, M. Ichikawa, M. Wada, H. A. Schuessler, “A study of cold ion-polar molecule reactions between sympathetically cooled molecular ions and slow polar molecules”, Mo-169, 23rd International Conference on Atomic Physics (ICAP2012), Ecole Polytechnique, Palaiseau, France, 23-27 July, 2012.
- ⑧ 古川貴浩, 市川雅成, 和田道治, H. A. Schuessler, 岡田邦宏, 低速極性分子と共同冷却分子イオンの反応速度測定, 日本物理学会 2012 年第 67 回年次大会, 24pAB-4, 関西学院大学, 2012 年 9 月.
- ⑨ 古川貴浩, 市川雅成, 和田道治, H. A. Schuessler, 岡田邦宏, “シュタルク分子速度フィルターを用いた極低温分子イオン-極性分子反応の研究”, 分子分光研究会 (上智大学) 2012 年 5 月 18 日.
- ⑩ 木村直樹, 椎名皓一, 高柳俊暢, 和田道治 A, H.A.SchuesslerB, 岡田邦宏, “Ca⁺クーロン結晶と極性分子のレーザー誘起反応の測定”, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 21aEA-10, 富山大学, 2011 年 9 月.
- ⑪ 古川貴浩, 菅沼拓也, 岡田邦宏, 和田道治, H. A. Schuessler, “シュタルク分子速度フィルターを用いた低速極性分子と Ca⁺クーロン結晶の反応測定”, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 21aEA-9, 富山大学, 2011 年 9 月.
- ⑫ N. Kimura, K. Okada, K. Shiina, T. Suganuma, M. Wada, H. A. Schuessler, “Laser-induced reactions between a Ca⁺ Coulomb crystal and polar molecules”, poster We087, XXVII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2011), 27 July - 2 August 2011, Belfast, Northern Ireland, UK.
- ⑬ T. Suganuma, K. Okada, N. Kimura, K. Shiina, M. Wada, H. A. Schuessler, “A Stark

velocity filter for studying cold polar molecule-molecular ion reactions”, poster We088, XXVII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2011), 27 July - 2 August 2011, Belfast, Northern Ireland, UK.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡田 邦宏 (OKADA KUNIHIRO)

上智大学・理工学部・准教授

研究者番号 : 90311993