



主任研究員 東 俊行 (工博)
AZUMA, Toshiyuki (D. Eng.)

キーセンテンス：

1. 静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突
2. 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起

キーワード：

原子分子物理、原子衝突、イオン蓄積リング、静電リング、イオントラップ、真空孤立1分子、負イオン、クラスター、合流衝突、低温反応、超励起状態、準安定イオン、放射性冷却、宇宙における化学進化、生体分子イオン反応、レーザー分光、多価イオン、重イオン、高速イオン、チャネリング、コヒーレント共鳴励起、オコロコフ効果、多電子励起状態、脱励起X線、コンボイ電子、単結晶

研究概要

当研究室では、宇宙における分子進化の理解から大型複雑分子のダイナミクスや原子と結晶との相互作用に至るまでの多岐にわたる物理現象を、原子・分子・光物理学における新たな手法や視点から実験研究することを目的としている。そのために、特に分子イオンの励起や脱励起過程の観測や低速原子分子反応過程の研究に適したコンパクトな静電型イオン蓄積リングを、現在新たに開発している。装置を液体ヘリウム温度にまで冷却し、振動回転状態を制御した冷却分子イオンの低エネルギー原子分子反応過程の研究を計画している。また、蓄積イオンの質量に制限が実質的でないという特徴も利用して、大型生体分子イオンやクラスターイオンの励起状態のダイナミクスや関与する反応のエネルギー依存性なども知見を得ることが可能であると期待される。そのほかに、結晶周期場による高速重イオンに対する原子操作の研究にも取り組んでいる。極端紫外からX線領域に至るまでのエネルギー領域における既存のレーザー技術では困難な重イオンの分光や量子操作を可能とする「光を使わない励起・分光手法」としての位置を確立しつつある。

1. 静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突

1.1 液体ヘリウム冷却型静電型イオン蓄積リング開発

首都大学東京における1号機の製作によって培った経験を基礎とし、より低温での実験を可能とする静電型イオン蓄積リング開発プロジェクトが進行している。本年度はシミュレーション等を駆使して基本設計を実施し、H23年度より建設作業に移行する予定である。一部に関しては、本年度中に製作が進行している。新しいプロジェクトの目標は、リングの液体ヘリウム温度冷却による極低温化、それに伴うテーブルトップサイズまでの小型化と予備冷却用プリオンラップの開発である。イオン源で生成された分子イオンは通常高温であり、蓄積周回中に冷却されるが、必要とする時間は長く一般に数秒以上を要する。そこで、まずイオン源生成イオンを極低温トラップで蓄積、Heバッファーガスとの弾性散乱で強制冷却したのちに、リングに導入する。リング自身も極低温環境を用意し、蓄積分子イオンの振動回転準位を分光制御した上で、さらにイオン・中性衝突反応を探索することを狙いとしている。リング本体全体を極低温化するために真空度も飛躍的に向上することが期待され、イオン蓄積時間も大きく延ばすことができる。

極低温化のためには、当初液体ヘリウムを導入することが計画されていたが、最終的には取り扱いの利便性や冷却効率を勘案して、GM型冷却器を本体リングに3台、プリトラップに1台導入することに決定された。アルミ合金製の直方体台座の上に各種電極やモニター装置等を設置し、全体を10K以下に冷却する計画である。これら本体構造は超高真空容器内に保持され、その外側に冷却された2重の断熱用容器を用意する。すべての構造を最外層円筒型真空容器内に納めるという構造である。GM冷凍機の着脱や2段階の低温ステージの効率的冷却のために熱計算による詳細な評価を加えた。また実際の最適電極配置に関しては、組み立て精度や熱収縮などを配慮した上で、小型化による問題点を軌道計算シミュレーションにより検討した。

プリトラップの設計に関しても既に運転している既存トラップを参考にGM冷凍機による冷却を採用したRFトラップを製作することを決定した。合流衝突用の中性粒子ビームの導入に関しては、Cs

スパッター型負イオン源の導入、加速ビームラインとともに、Nd:YAG レーザーによる電子脱離システムの設計等を終えた。

1.2 液体窒素冷却型静電型イオン蓄積リング

本年度も、首都大学東京との共同研究による静電型イオン蓄積リングを利用した実験は精力的に展開され、主に分子イオンを中心とする以下のような実験や開発が行われた。

1.2.1 巨大分子イオン入射システムの開発

生体分子を含む様々な巨大分子・クラスターイオンの導入を可能にするため、エレクトロスプレーイオン(ESI)源およびマグネトロスパッタ型金属クラスターイオン源の開発を開始した。エレクトロスプレーイオン源では、四重極質量選別器と接続して各種イオンの質量スペクトルが得られており、多価のタンパク質イオンや複数の水分子が溶媒和したメチレンブルー陽イオン($MB^+(H_2O)_n$, $n=4-60$)などの生成を確認している。後者において特徴的なのは、 $n=1-3$ の水和イオン生成が極めて抑制されていることである。これは、 $MB^+(H_2O)_4$ は $MB^+(H_2O)_3$ と 1 個の H_2O 水分子よりも、 MB^+ と $(H_2O)_4$ に分解しやすいのに対して、 $n>4$ の水和イオンの場合、 H_2O 水分子は 1 個ずつ蒸発することに起因する。また、 $n=24$ で観測された顕著な魔法数も、 $MB^+(H_2O)_{24}$ イオンが $MB^+(H_2O)_4$ イオンに籠上の $(H_2O)_{20}$ が付着して形成されたことを強く示唆している。

ESI で生成したメチレンブルー陽イオンを、一旦プリオントラップに捕捉し、10 Hz で引き出したイオンバンチをパルス的に 15 keV に加速して実際にイオン蓄積リングに導入した。この測定では、イオンの絶対量を測定するため、イオンをリングから掃き出して直接計測し、掃き出し時間を変えることによって周回イオン量の蓄積時間依存性を得た。その上で、可視波長可変 OPO レーザーをリング直性部分に導入し、レーザー光吸収によって生成した中性粒子を観測することで分光を行った。その結果水溶液中で報告されている吸収スペクトルより大きくブルーシフトしたスペクトルが得られ、水溶液中における水和効果が明らかになった。今後、このプリオントラップを極低温化することにより内部温度制御された巨大分子イオンをリングに入射させることを計画している。なお、マグネロン型スパタイオン源では、プラズマ点火を確認し、本イオン源のための高周波イオン収束装置(イオンファネル)の製作を行った。

1.2.2 直鎖炭化水素負イオンの寿命、分光測定

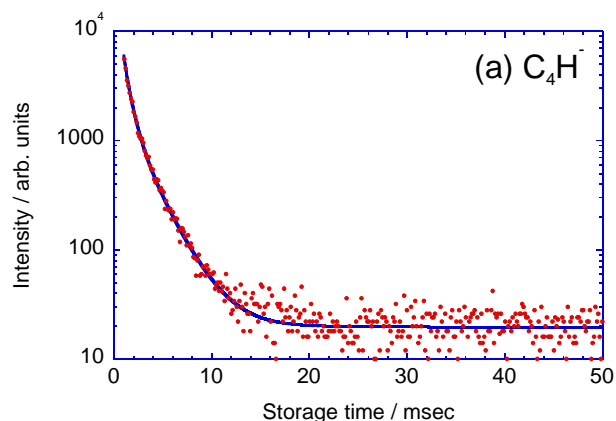


図 1 イオンリングに蓄積された C_4H^- の電子脱離による寿命。実線は、3 成分の短寿命と 1 成分の長寿命の指数関数でフィッティングを行った結果である。

炭化水素負イオン (C_4H^- , C_6H^-) には数ミリ秒オーダーの寿命を持つ準安定状態が存在することが観測された。このような成分は炭素分子負イオン (C_4^- , C_6^-) では観測されないことと対照的である。測定結果の一例として、図 1 に C_4H^- における電子脱離の寿命を示す。図中で平らに見える部分は実際には数秒程度の寿命で、残留ガスとの衝突による電子脱離によるものである。先頭の減衰成分は、ミリ秒オーダーの寿命成分で構成され、自動脱離する負イオンの準安定状態が複数あることを示唆する。装置を常温および液体窒素温度に保った場合の寿命の変化が見られないことから、黒体輻射の関与しないこと

最近、星間空間に負分子イオンが存在することが、観測と地上実験室におけるマイクロ波分光より、初めて証明された。これらは、 C_4H^- 、 C_6H^- 、 C_8H^- 等の直鎖炭化水素負イオンであり、生成過程において負イオンの準安定状態を経由した生成負イオンの電子脱離過程や放射性脱励起過程が重要な役割を果たすと考えられる。イオン蓄積リングは入射したイオンを数秒にわたり蓄積が可能であるので長寿命の準安定状態からの脱励起過程で生じた中性粒子を高感度に検出するのに最適である。そこで、本年度は炭化水素負イオン (C_4H^- , C_6H^-) を蓄積し電子脱離による寿命を詳細に測定した。

Cs スパッター型イオン源から引き出した炭化水素負イオンを 20 keV のエネルギーでリングに入射・蓄積した。入射した負イオンビームには目的のイオン種の他、不純物が混在している。そこで、イオン周回速度の質量依存性を利用したパルス偏向電場により不純物イオンを排除した。

も確認した。

引き続き、孤立状態における分子イオンの分光および冷却過程を研究するために、可視波長可変 OPO レーザーを導入し、 C_4 および C_4H^- 負イオンのレーザー吸収による生成中性粒子収量の波長依存性(アクションスペクトル)を観測した。 C_4^- 、 C_4H^- イオンともに、電子親和力よりも低いエネルギーの 1 光子で電子脱離が起ることを確認した。これはイオン源で生成された両イオンが高温にあることを示している。またイオン蓄積リング入射後 5-90ms 蓄積した後に観測したスペクトルでは、周回イオン量で規格化された中性粒子収量全体が時間と共に減少することや、 C_4^- において顕著な 600-700nm 付近にみられる立ち上がり構造が先鋭化してくるを見いだした。これはともにイオンが時間と共に冷却されていることを示唆している。

2. 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起

単結晶中を通過する高速イオンは、結晶周期ポテンシャルを振動電場として感じる。この振動数が入射イオンの原子準位エネルギー差と一致するとき、共鳴的な励起が期待され、この現象はオコロコフ効果もしくはコヒーレント共鳴励起(RCE)と呼ばれている。我々は、HIMAC (放射線医学総合研究所重イオン加速器)やドイツ GSI 重イオン研究所において供給される 100-400 MeV/u の多価重イオンを Si 結晶に通過させ、入射イオン方向に対する結晶の角度を走査しながら、出射イオンの電荷や脱励起 X 線を観測することによって X 線領域の原子遷移制御をすることを目標として実験研究を行ってきた。また、イオンから放出される 2 次電子の観測からも RCE を研究した。今年度は、1-10 ミクロン厚の Si 薄膜結晶による通過原子列あるいは原子面の周期性を利用する 2D-RCE(2 次元 RCE)、3D-RCE(3 次元 RCE)を観測した。

2.1 3D-RCEによるコンボイ電子生成の研究: 105 MeV/u and 412 MeV/u He-like $Ar^{16+} 1s^2 \rightarrow 1s2p$

HIMACを使って、数年間に亘って挑戦してきた配向制御された(磁気副準位を選択した)重イオンからのコンボイ電子の観測を、異なるふたつの条件下で達成した。一つは、イオン進行方向に垂直な面をもつ周期的原子配列によって、105 MeV/u ヘリウム様 Ar^{16+} イオンを $1s^2$ 基底準位から $1s2p_0$ 励起準位へ 3D-RCEによって励起させるものである。もう一方は、同じ原子面配列によって、412 MeV/u ヘリウム様 Fe^{25+} イオンを励起するものである。一般に束縛電子をもつ高速イオンがさらに結晶原子と衝突して電離する際に放出される 2 次電子は、入射イオンと等速で前方方向に進む。これらは一般にコンボイ電子と名づけられている。これの入射イオンとほぼ等速の 2 次電子を、真空チャンバー内の結晶標の下流数 10 cm の位置に設置した磁場型電子分光器と SSD 型 Si 検出器で検出した。これによって磁場型分光器で 2 次電子の運動量、SSD でエネルギーを測定した。

観測されたコンボイ電子のエネルギー分布には、基底状態イオンから放出された場合と、RCEによる励起状態から放出された場合では大きな違いが観測されなかった。105 MeV/u イオンの場合は、放出される電子が 58 keV 程度であり、結晶中で多重散乱をする結果、イオン化直後のエネルギー分布が失われる可能性が高い。しかしながら、後者では 2 次電子は 224 keV 程度であり、そのような問題は起こりえない。その一方で、我々は、より顕著な特徴をコンボイ電子の収量変化において見いだした。すなわち、RCEによって励起後イオン化された割合は、結晶通過後のイオン電荷分布を測定することから求められる。この変化量と、生成 2 次電子の収量は一対一対応することが当然期待される。ところが、観測されたコンボイ電子の収量増加は、電荷分布の変化割合と比べ著しく大きいことが、いずれの場合にも見いだされた。これは、測定において有限の立体角で前方方向へ放出されるコンボイ電子を測定していることによるもので、励起状態イオンから放出されたコンボイ電子の方が基底状態イオンより放出されたコンボイ電子よりも、幾何学的に高効率で観測されていることに起因しており、イオン進行方向に対して横方向のエネルギー分布の違いを反映して、 $2p$ 励起状態イオンの束縛電子運動量分布が $1s$ 基底状態イオンより狭いことの表れである。当初我々は、運動量分布の縦方向の違いに起因するコンボイ電子のエネルギー分布の変化を捉えようと意図していたが、この変化より横方向の違いによる収量の変化の方がより敏感に反映するという結果が得られた。現在、理論家との共同研究によるこの様相に関するシミュレーションとの比較を検討している。

2.2 3D-RCE によるラダー型 2 重共鳴の研究(リチウム様イオンの 3 重同時励起状態生成)

: 445 MeV/u Li-like Ar¹⁵⁺ 1s²2s → 1s2s2p → 2s2p²

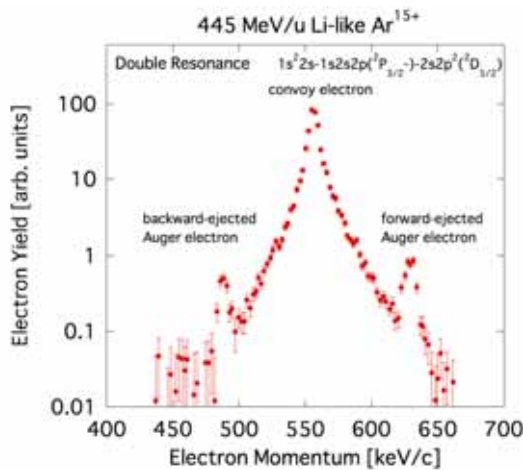


図 2 2重共鳴条件下における前方方向(ゼロ度方向)への放出電子エネルギースペクトル

前年度のHIMACを使ってのヘリウム様イオンの2重励起の成功に引き続いて、今年度はリチウム様イオンの2重励起実験を試みた。リチウム様イオンは、基底状態において当初から2s状態に電子を一つもつため、RCEによって2重の励起をさせると、結果的に内殻軌道が空で3個の電子が外殻軌道にある特異な多電子励起状態のイオンを生成できると期待される。このような中空イオンと呼ばれる状態は、軌道電子間の相互作用が強いため、それぞれの電子を独立に扱う独立粒子モデル(または平均場近似)ではなく量子多体系の取り扱いが必要となる。実験的には、特に重イオンに対して選択的に中空イオンを生成することは容易でなく、その研究は理論的、実験ともに原子物理学における重要な課題である。

445 MeV/u リチウム様3電子系のAr¹⁵⁺イオンを対象とし、(1,·2,·3)ミラー指数の結晶面配列を使って、1s²2s - 1s2p 励起を起こし、さらに(1,·1,2)ミラー指数

配列によって1s2s2p - 2s2p²励起させることによりすべての電子を励起させた。

非共鳴条件下では、結晶通過後のAr¹⁵⁺イオンの生き残り割合は、0.30であったが、1重共鳴条件下では0.24に、2重共鳴条件下では0.22-0.24に減少した。図2に示すように、2重共鳴条件下では、前述のコンボイ電子共鳴ピークの両肩にオージェ電子に起因するピークが明瞭に観測された。中間状態である1s2s2p準位のオージェ寿命はスピン状態、すなわち²P_{1/2}あるいは²P_{3/2}に依存し、最終状態の生成収量に影響を与える。より明確にこれら励起状態の同定を行うために、分解能を向上させた2次電子アナライザーの導入を計画している。

2.3 GSI 重イオン研究所における RCE 実験: 190MeV/u Li-like U⁸⁹⁺ 2s_{1/2} → 2p_{3/2}

ドイツ GSI 重イオン研究所の施設を利用して、リチウム様 U⁸⁹⁺における 2s_{1/2} から 2p_{3/2} 準位への遷移(遷移エネルギー: 4.5keV)を精密測定することによる QED テストを目標とした実験を、前年度のテスト実験に引き続き H22 年夏に行った。電荷が大きくなると励起状態は短寿命でX線放出して脱励起するため、共鳴観測はX線が主となる。幾何学的効率を配慮して、高検出効率X線測定が必須である。大面積(100 mm²) Si ドリフト型 X 線検出器を真空チャンバー内に4個設置した。実験は 190 MeV/u リチウム様 U⁸⁹⁺ を 10 ミクロン厚の Si 結晶に通過させ、(200)面チャネリング条件下で(2,1)ミラー指数の原子列配列による 2-DRCE を使って 2s_{1/2} → 2p_{3/2} を起こさせた。その結果、理論の予想通りの条件下で、共鳴ピークを観測することができた。

前回の実験で得られた共鳴幅には SIS シンクロトロン加速器から取り出される際のビームエネルギー幅や、その後の電荷変換のためにフォイルを通過した際のエネルギー拡がりも反映されていた。これを改善するため、SIS シンクロトロン加速器から取り出したヘリウム様 U⁹⁰⁺イオンを ESR イオン蓄積リングに一度導入し、電子クーラーと合流させることで運動量幅を狭窄化した。その後、同じ電子クーラー中の電子の捕獲過程によってリチウム様 U⁸⁹⁺イオンになったものを ESR リングから取り出し、実験室へ導入した。これにより、入射イオンのエネルギー拡がりが1桁以上狭められたが、得られた共鳴幅は相当する狭窄化が観測されなかった。ビーム輸送における角度拡がりの改善が残る問題として重要であること認識され、この改造の議論を開始した。

Key Sentence :

1. Atomic, and molecular collisions using an electrostatic ion storage ring
2. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions

Key Word :

atomic and molecular physics, atomic collision, ion storage ring, electrostatic ring, ion trap, isolated single molecule, negative ion, cluster, merging collision, low-temperature reaction, super-excited state, meta-stable ions, radiative cooling, chemical evolution in space, bio-molecular ion reaction, laser spectroscopy, channeling, highly-charged ions, heavy ions, fast ions, resonant coherent excitation, Okorokov effect, multi-electron excitation, de-excitation x-ray, convoy electron, single crystal

Outline

We experimentally study wide-ranged physical processes; cold chemical reaction relevant to universe evolution, dynamics of large complex molecules, atom interaction with crystals, from new methods and view points of atomic, molecular and optical physics.

We are now in progress of construction of a compact electrostatic ion storage ring dedicated for investigating molecular collisions and dynamics. Low-energy collisions and reactions of cold molecular ions in the specific vibrational and rotational states prepared by the ring is our primary mission to be explored. Taking advantages that an electrostatic ring has no limitation of mass of stored ions, we expect that the excitation and de-excitation dynamics of large bio-molecular ions and cluster ions as well as energy-differential cross section of relevant collisions are revealed.

We have also been trying manipulation of high-energy heavy atomic ions by the crystal periodic fields. Now this coherent excitation using a crystal is established as a new tool for spectroscopy and manipulation of heavy ions without using photons in the energy region from EUV to X-rays, which is not easily achieved by traditional laser technology.

1. Atomic, and molecular collisions using an electrostatic ion storage ring

1.1 Development of an electrostatic ion storage ring of liquid-helium temperature

Development of a new electrostatic ion storage ring at RIKEN is now in progress for extended experiments at lower temperature, based on the experience and knowledge of the TMU E-ring. In this year, we performed basic designing with simulation, and plan to start construction from 2012. A part of the constructions have been already started. We aim the lower temperature operation of the ring, and the down-sizing to the table-top compact size combined with a pre-cooling ion trap.

Molecular ions produced at the ion source are often hot and will be cooled down during storage and circulation in the ring. However, the required time period is quite long, and it sometimes needs the order of several seconds. We plan storing the produced ions in the low-temperature pre-cooling ion trap in advance. The ions are cooled by the elastic collisions with He-buffer gas, and are introduced into the ion ring. The ion ring itself is also cooled down to the liquid-helium temperature and diagnosis of the vibrational and rotational state of the stored ions by the laser-merging technique is planned. Our mission is exploring ion/neutral collisions of the stored molecular ions in the specific vibrational and rotational states by the merging experiments with a beam of the neutral atoms. Keeping the whole devices at the low temperature, we also expect the extremely-good vacuum condition to store the ions for the long period.

Initially, introduction of liquid helium flow had been considered for the low temperature. However, taking account of handling and efficiency, we decided to adopt GM-type helium cryo-coolers; three for the ion ring and one for the pre-cooling ion trap. We prepare a square-shaped table made of Al-alloy, and all elements and electrodes for controlling the trajectories and devices monitoring ion trajectories are settled on the table, which are cooled below 10K. This main component is contained in an ultra-high vacuum chamber and covered with doubly-folded thermal-shielding boxes. All of them are installed an outer-vacuum chamber of cylindrical shape. Attachment of the cryo-coolers needs specific devices, and effective cooling of the two-staged shielding boxes requires thermal-flow calculation in detail. Problems related with down-sizing are critical, and adjustment of the electrode configuration including the precision of the assembling and thermal shrinking was also considered with ion trajectory simulation.

Concerning designing of the pre-trap, we decided to adopt a cylindrical RF ion trap cooled with a GM-type helium cryo-cooler, which was a modified version of the ion trap for the cluster-ion spectroscopy already-developed in our collaboration. For a neutral atom beam for ion/neutral merging experiments, we introduced a new Cs-sputtered ion source for negative atomic ions, an acceleration system, and a Nd:YAG laser for electron detachment of the negative ions to produce the neutral beam.

1.2 Experiments with an electrostatic ion storage ring of room and liquid-nitrogen temperatures

In the collaborations with atomic physics group and the cluster-chemistry group of Tokyo Metropolitan University, we have intensively involved in the following experiments dealing mainly with molecular ions using the electrostatic ion storage ring (TMU E-ring).

1.2.1 Development of the injection system of large molecular ions

We adopted an electrospray ion source (ESI) and a magnetron-sputter type cluster ion source to introduce large molecular ions including biomolecular ions and cluster ions. Using the ESI coupled with a quadrupole mass spectrometer, multiply-charged protein ions and microhydrated methylene blue cations, $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_n$, were produced and their size-distributions were measured as a function of the source temperature. A series of $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_n$ ions was observed up to $n \leq 60$. A striking feature observed in the mass spectra was that the series of hydrated ions started at $n = 4$; intensities of $n = 1 - 3$ were extremely suppressed. The absence of $n = 1 - 3$ ions was well explained by the energetics concerning evaporation processes of water molecules, based on stable structures and the binding energies of $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_n$ ions calculated by DFT calculations up to $n = 5$. $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_n$ ions for $n > 4$ evaporate a single water molecule sequentially, while $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_4$ tends to fragment into MB^+ and $(\text{H}_2\text{O})_4$ rather than $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_3$ and an H_2O molecule. We observed a clear magic peak at $n = 24$, which strongly suggests that the $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_{24}$ ion was formed by attaching a neutral $(\text{H}_2\text{O})_{20}$ cage onto an $\text{MB}^+(\text{H}_2\text{O})_4$ ion.

These methylene blue cations were captured in the pre-ion trap prior to the injection to the ring, and extracted in a pulsed mode of 10 Hz frequency and accelerated to 15 keV for ring injection.

Absolute ion intensities were measured by extracting the stored ions from the ring, and their storage time dependence was obtained by scanning the extraction timing against the injection time. Introducing a visible wavelength tunable OPO laser into the straight section of the ring, neutral products resulting from photo-absorption was monitored with this technique to perform action spectroscopy. The obtained spectrum is blue-shifted compared with the reported absorption spectrum in solution, which suggest the solvation effect. By introducing the cryo-cooled pre-trap, we plan injection of the well-cooled large molecular ions in the ring in near future.

As for the magnetron-sputter type cluster ion source, we observed plasma ignition and constructed an ion-funnel for guiding the ion with a RF electric field.

1.2.2 Lifetime measurement and spectroscopy of negative linear hydrocarbon ions

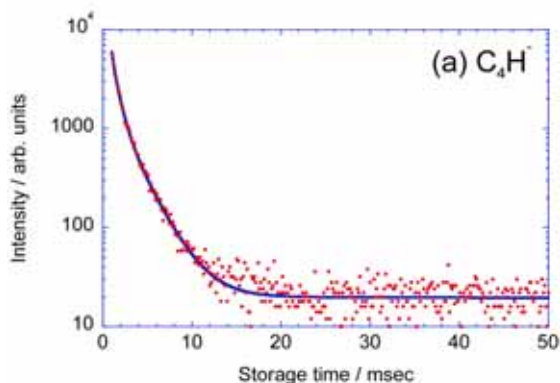


Fig. 1 Storage-time dependence of the neutral yield for the storage of C_4H^- . The solid line shows the fitting curve consisting of 3 short-lifetime components and 1 long-lifetime one.

Existence of negative molecular ions in cold universe has been recently found and confirmed by radio telescope observation and microwave spectroscopy in laboratories. They are linear hydrocarbon ions of C_4H^- , C_6H^- , C_8H^- , and electron detachment and radiative de-excitation process via metastable states play a key role in the formation process. The ion storage ring is capable of storing the ions for the long period, and it is suitable to detect neutral products from long-lived metastable states. Thus, we stored and investigated C_4H^- and C_6H^- ions in addition to C_4^- and C_6^- ions.

They were extracted from a Cs sputtered ion source, accelerated to 20 keV, and injected into the ion ring. Impurity components were excluded by applying the deflection electric field in a pulsed mode utilizing a difference in the circulating frequency depending on the mass. We measured the lifetimes by detecting the neutral products resulting from electron detachment during

storage, and found that C_4H^- and C_6H^- have metastable components of the millisecond-order lifetime, while C_4^- and C_6^- have no such component.

As a typical example, we show the storage-time dependence of the neutral product yield for C_4H^- in Fig. 1. A flat region in the figure has a decay lifetime of several seconds due to the collisions with residual gas. The metastable fraction consists of several components decaying via auto-detachment of the millisecond-order lifetime. We confirmed that these components are not related with blackbody radiation, since we observed no change of these lifetimes when the ring was cooled down to the liquid nitrogen temperature.

For spectroscopy of these molecular ions, we again introduced a visible wavelength tunable OPO laser into the ring. We observed that electron detachment takes place by absorption of one photon with energy smaller than electron affinity of these ions, which suggests that the ions produced in the ion source are initially hot. The spectrum measured at the timing of 5-90 ms after the ion injection shows that the total neutral yield normalized to

the number of the stored ions gradually decreases, and the rising-edge structure at the region of 600-700 nm appears especially for C_4^- during the ion storage. Both indicate that these ions experience radiative cooling process.

2. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions

A fast ion traveling through a single crystal feels the crystal periodic potential as the oscillating fields. When the frequency corresponds to the energy difference of the atomic levels of the ion, coherent excitation happens. This phenomenon is called Okorokov effect or resonant coherent excitation (RCE). We have been using 100-400 MeV/u highly charged heavy ions supplied from the HIMAC heavy ion accelerator at the national institute of radiological sciences (NIRS), Japan and the GSI heavy ion research institute, Germany. To control of the population in the atomic levels in the x-ray region, we have measured the charge state distribution of the ions passing through a silicon crystal and de-excitation x-rays from the excited ions while we change the angle between the incident ion beam and the crystal. We have studied RCE also by the detection of secondary electrons released from the ions. We can observe 2-dimensional RCE (2D-RCE) and 3-dimensional RCE (3D-RCE) utilizing the periodicity of the crystal atomic strings and planes by adopting a thin Si crystal foil of 1-10 micron in thickness.

2.1 3D-RCE observed by convoy electrons: 105 MeV/u and 412 MeV/u He-like Ar^{16+} $1s^2 \rightarrow 1s2p$

In 2010, we succeeded in observing the convoy electrons from the aligned state for the first time under the two different conditions at HIMAC. One is RCE from $1s^2$ to $1s2p_0$ excited states for 105 MeV/u helium-like Ar^{16+} ions. The p_0 state is obtained by exciting the traveling ions with the array of atomic planes perpendicular to the direction of the ion motion by adopting an array of atomic planes specified by Miller index of $(klm)=(200)$. The other is RCE for 412 MeV/u helium-like Fe^{25+} ions using the same (200) atomic planes. In contrast to the theoretical expectation, both cases did not show significant change in the energy distribution of the convoy electrons. For the former case, the released electrons with energy of 58 keV suffer from subsequent multiple scattering in the crystal and it is suggested the original structure may be obscured. However, the latter case of 224 keV electrons is free from such a problem. Thereby we concluded that an anti-cusp structure, which was initially expected from theories, was not observed at least under the present resolution of the electron analyzers.

However, we obtained more significant features in the convoy electrons. For all of the cases, regardless of the alignment, we indeed observed that the relative enhancement of the convoy electron yield between on and off resonance conditions was much larger than the relative decrease of the survival fraction. It leads that the geometrical detection efficiency of the magnetic analyzer for the convoy electron emitted from the excited state is larger than that for the convoy electron from the ground state. This is reasonably explained by the fact that the energy spectrum of the convoy electrons mirrors the momentum distribution of the initial bound state of the ions (the Compton profile). The momentum width of the convoy electron originating from the 2p excited state is narrower than that from the 1s ground state, and especially in this case the momentum width in the transversal direction with respect to the ion beam is crucial.

Previously, before these observations we had expected that the energy distribution should reflect the momentum width of the initial state of the ions excited by 3D-RCE in the parallel direction to the ion beam to a large extent. However, we now realized the convoy electron yield is much sensitive to the Compton profile in the transversal directions. It is anticipated that such tendency is indeed reproduced by theoretical simulation including the analyzer condition.

2.2 Ladder-type double resonance of 3D-RCE: doubly-excited states (triply-excited state formation of lithium-like Ar ions): 445 MeV/u Li-like Ar^{15+} $1s^2 2s \rightarrow 1s2s2p \rightarrow 2s2p^2$

We tried selective formation of the doubly-excited heavy ions under the double resonance condition of 3D-RCE, which is not easily attained by conventional optical methods. Inspired by the success in the double resonance experiment of helium-like ions in 2009, we proceeded in double resonance excitation of lithium-like ions to form a hollow atom which accompanies all of three bound electrons in the $n=2$ excited states. We performed a double resonance experiment for 445 MeV/u lithium-like Ar^{15+} ions, and induced excitation of both K-shell electrons into the $n=2$ excited states: the transition of $1s^2 2s - 1s2s2p$ through the array of the atomic planes of $(k,l,m)=(1,-2,-3)$ and subsequent transition of $1s2s2p - 2s2p^2$ (1,-1,-2). The survival fraction of Ar^{15+} ions decreased from 0.30 under the non-resonance condition down to 0.24 on single resonance condition, and to 0.22-0.24 on the double resonance condition.

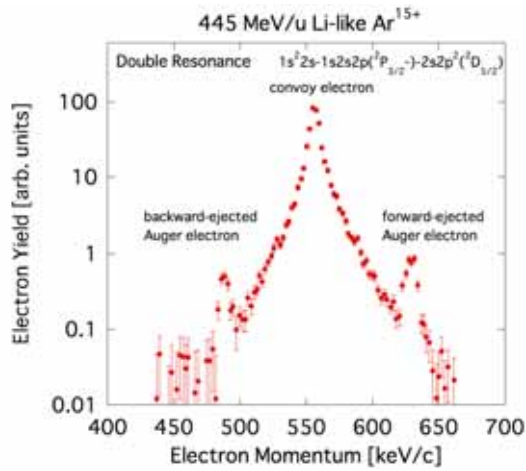


Fig. 2 Emitted electron energy spectra at zero degree under the double resonance condition.

As shown in Fig. 2, we observed evident Auger electron enhancement at the both shoulders of the convoy electron peak. Auger lifetime of the intermediate state of $1s2s2p$ depends on the spin state, i.e., $^2p_{1/2}$ or $^2p_{3/2}$, which should affect the yield of the final state formation. To confirm formation of the hollow atom, we need information of more precise energy of Auger electrons to distinguish the initial states precisely.

2.3 Precise Spectroscopy by Precision spectroscopy by RCE: 190MeV/u Li-like U^{89+} $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{3/2}$

Aiming precise spectroscopy of the 4.5keV transition from the $2s_{1/2}$ to $2p_{3/2}$ state of Li-like U^{89+} ions for the QED test at the strong field, we performed RCE experiments in summer of 2010 followed by the first trial in the previous year at GSI. As the nuclear charge increases, the excited state radiatively decays rapidly. Therefore, we observed RCE by measuring the x-rays by four large-area (100 mm²) Si drift x-ray detectors installed in the vacuum chamber.

190MeV/u Li-like U^{89+} ions have passed through 10 micron thick Si crystal under the (200) planar channeling condition, and excitation from $2s_{1/2}$ to $2p_{3/2}$ state were induced by 2D-RCE through the array of the atomic strings of $(k,l)=(2,1)$. We succeeded in observing clear RCE resonance, and the observed peak position is roughly in agreement with the theoretical prediction. In the previous experiments, the resonance width reflects the ion beam energy width provided from the SIS synchrotron in addition to the energy straggling resulting from the ion passing through the stripper foil for charge stripping.

To overcome this problem, helium-like U^{90+} ions were extracted from the SIS synchrotron, and stored in the ESR ion storage. The stored ions were cooled by merging with the electron cooler. The charge-changing component of lithium-like U^{89+} due to electron capture was extracted from the ESR and transported to the experimental chamber. Owing to this process, we could reduce the energy width of the incident beam to a large extent, however the observed resonance width was not so narrow as expected. This suggests that the angular divergence during the beam transport remains as an origin for broadening of the resonance width.

Principal Investigator

東 俊行 Toshiyuki Azuma

Research Staff

小林 峰 Takane Kobayashi

中野 祐司 Yuji Nakano

Andrzejewski Roch Andrzej

Students

須田 慎太郎 Shintaro Suda

大月 聡子 Satoko Ohtsuki

森本 航 Wataru Morimoto

高橋 聡樹 Satoki Takahashi

戸田 新之輔 Shinnosuke Toda

Assistant and Part-timer

高野 由加 Yuka Takano

Visiting Members

粟屋 容子 Yohko Awaya

田沼 肇 Hajime Tanuma

城丸 春夫 Haruo Shiromaru

間嶋 拓也 Takuya Majima

松本 淳 Jun Matsumoto