

東原子分子物理研究室  
Atomic, Molecular & Optical Physics Laboratory

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. 先端光源を用いた新しい原子分子光物理学の開拓
3. 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, クラスター, 合流衝突, 低温反応, 励起イオン, 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, 超短パルス高強度レーザー, レーザー分光, 超短パルス高強度レーザー, アト秒物理学, 高次高調波, 時間分解分光, 分子配向技術, コヒーレント制御, 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, 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強光子場や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開発した。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の知見を得ることが可能であると期待される。

これに加えて、新しい原子分子光物理学を開拓するために、極短パルス高強度レーザーを組み合わせた光と粒子ビームの衝突実験や、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重イオンの分光や量子操作さらに極短時間領域のダイナミクスの探求をめざしている。

1. 極低温静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突 (榎本, 中野, 増永, 東)

1.1 極低温静電型イオン蓄積リングの開発

極低温に冷却可能なイオン蓄積リングの設計・開発を昨年度に引き続き行った。本装置は基礎科学研究課題「極限粒子ビームをもちいたエマージング科学領域の開拓研究」において、極低温分子ビームの生成を担う中核的装置であり、静電場を用いて極低温のリング内にイオンビームを周回蓄積し、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。また、装置全体を冷却することで真空度も飛躍的に向上するため、従来の室温型リングに比べ、長時間のイオン蓄積が可能となる。

本年度は昨年度までに設計した蓄積リング本体、排気用極高真空槽等の主要部分のほぼすべてが納入され、組み上げ及び真空、冷却テストを行った(図 1, 2)。蓄積リング本体の到達温度は 4.9K であり、目標値を十二分に上回ることが出来た。真空度に関しては現在もテスト中であるが、室温領域に設置した真空計ですでに  $10^{-11}$  Torr 台に到達している。今後設置予定のクライオポンプを併用することにより、更に桁程度良い結果が得られることが期待され、極低温領域のリングの真空度は目標通り、 $10^{-13}$  Torr 台に達する予定である。

また電源、制御機器、検出等の周辺機器の開発も急ピッチで進めており、こちらも主要部分は本年度後半に準備が整い、その組み上げ作業が進展している。計画では、来年度はじめごろにはこれらの装置を組み合わせ、イオンビームの蓄積実験をいよいよ始める予定である。

## 1.2 イオン入射システムの開発

上述の極低温リング開発に伴って、当初の入射蓄積テスト用の原子イオンを生成する ECR 多価イオン源およびこれに引き続く生体分子生成用の ESI イオン源と、リング本体をつなぐイオン入射システムの構築を行っている。前者はリング電極群に印加する電圧の最適化や入射の際のパルス挙動の調整、また実際に得られている真空度の蓄積時間を通じた評価に利用する予定である。後者は得られた分子イオンを蓄積し、レーザー合流による吸収スペクトルの診断等からイオン温度を評価するなどの実験へ展開予定である。ESI イオン源の後段には、イオン数を増加しさらに冷却化することを目的として、極低温イオントラップ部を設置している。ここに蓄積されたイオンは、GM 冷凍機により 4K に冷却された電極に囲まれた環境下でガス衝突させることにより冷却される。冷却イオンを引き出して、電極にパルスの高圧を加えることによりパルス加速し、リングに導入することを計画している。本年度はほぼ、必要な部品群が揃い、建設に来年度とりかかる予定である。

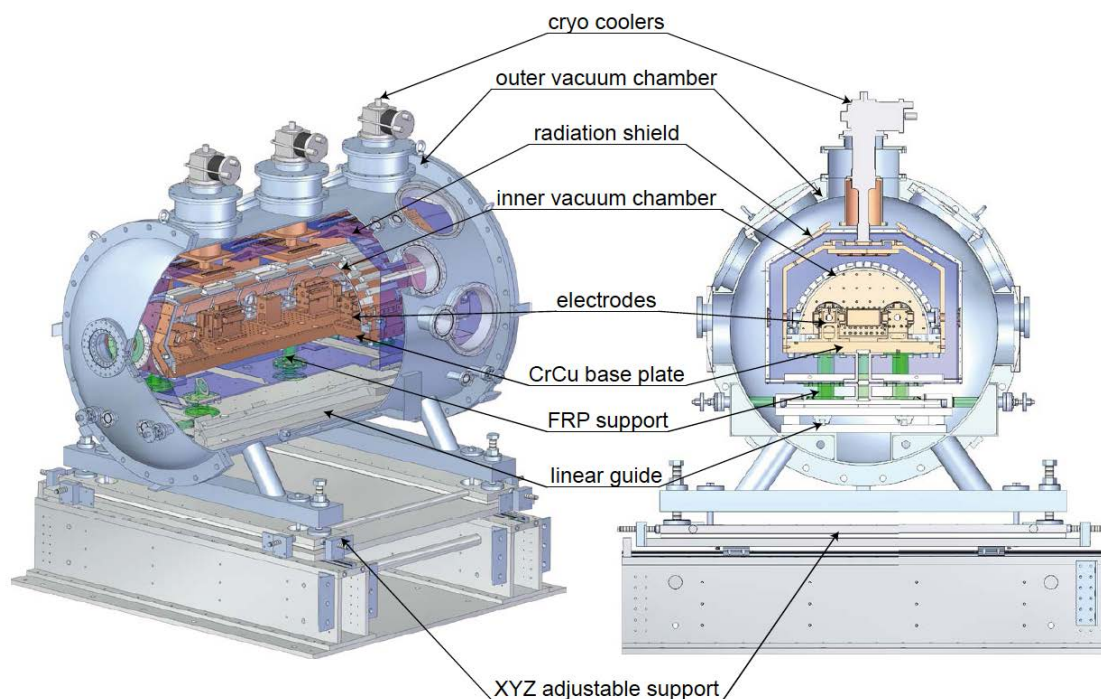


図 1. 極低温静電型イオン蓄積リング本体の概略図

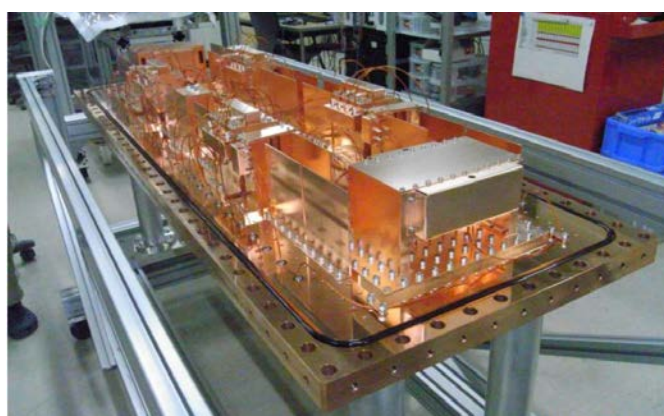


図 2. 極低温静電型イオン蓄積リング内部の CrCu 板に設置された電極群

## 2. 液体窒素冷却型静電型イオン蓄積リングによる原子分子衝突（東）

### 2.1 直鎖炭化水素負イオンの寿命，分光測定

星間空間において観測される負分子イオンの電子脱離過程や放射性脱励起過程を探求するために、これまで、直鎖状炭素クラスターイオンや炭化水素イオンを首都大学東京に設置した静電型イオン蓄積リ

ング中に常温の環境下で蓄積し、電子脱離による寿命を測定してきた。本年度は特に $C_5^-$ 、 $C_6^-$ 、さらに $C_6H^-$ イオンを対象として実験を行った。その結果、これら孤立負分子イオンのミリ秒以上の遅い冷却過程の全体像が明確に記述にできるようになった。大型の分子負イオンは一般に生成時、高温すなわち高い内部エネルギーを有する高振動状態にある。分子負イオンは、電子親和力を超えるような内部エネルギーを持つと電子脱離する。その過程は熱統計的に遅延過程を経て進行し、内部エネルギーの関数として速度が決定されることが知られている(thermionic emission)。すなわち、高い内部エネルギーを持つほど速く、低いほど遅く電子脱離する。よってイオンの電子脱離過程の時間分解挙動を観測する事で、内部エネルギーの情報を得ることが可能である。

従来、直鎖炭素クラスター( $C_n^-$ )イオンでは、炭素数(n)偶奇性に依存した準安定状態の有無が指摘され、観測される寿命もこれを反映したものであると予想されていた。しかしながら、我々は比較的小さい $C_5^-$ にはおいても大型イオンと同様に高温状態から熱統計的に遅延過程を経て電子脱離していることを実験および理論シミュレーションの両面から確認し、特定の準安定状態は冷却過程に関与していないことを見出した。 $C_6^-$ 、および $C_6H^-$ イオンの比較においても、 $C_6H^-$ イオンは、 $C_5^-$ と同様な挙動を示す一方で、 $C_6^-$ イオンの冷却がこのような遅延過程では説明されない速い過程を含んでいることが明らかになった。その機構は、振動準位間のIR光子放出による冷却ではなく、電子励起状態から可視光子を放出して一気に冷却する過程である。実際にシミュレーションでは、 $C_6^-$ にはこのような低エネルギー電子励起状態が存在し、大きく冷却に寄与することが示唆されているのに対し、ではそのような励起状態が存在しない。このように星間分子を含む炭素鎖分子負イオンにおいて、H原子付着の有無により、冷却過程に顕著な差が現れることを見出した。ミリ秒以上の遅いダイナミクスにおいては、従来実験手法の欠如から理解が充分でなかった重要な過程が我々のイオン蓄積リングで研究可能であることを証明した。このアプローチは引き続き理研において開発された極低温リングにおいてこそますます重要となると期待される。

### 3 先端光源を用いた新しい原子分子光物理学の開拓 (金井, 水野, 東)

新しい原子分子光物理学を開拓するために、フェムト秒レーザー、アト秒レーザー、波長可変ナノ秒色素レーザーを導入・開発し、それらの性能評価・同期テストを行うと共に、各種ターゲットチェンバーへのレーザービーム輸送ラインの構築・各種応用実験を行った。具体的な研究成果は以下に分類出来る。さらに、理研播磨において開発されたX線自由電子レーザーを用いた新しい原子分子光物理学を展開するため、KEKのグループと共同で自由電子レーザーを用いた光電子・分子イメージング実験を行った。

#### 3.1 搬送波包絡線位相安定化数サイクルレーザーとアト秒パルス光源の開発

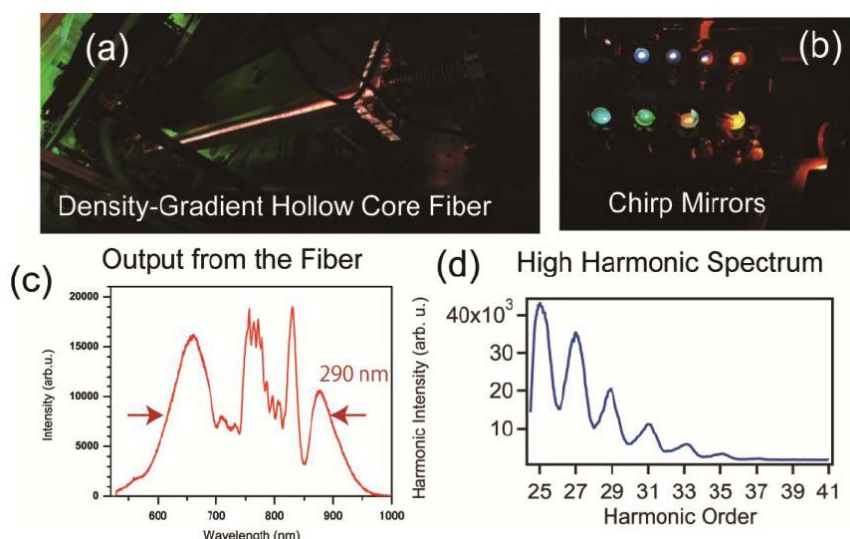


図3. 密度勾配型中空ファイバー圧縮システム(a,b)と、それらを用いた数サイクルパルス(c)、高次高調波スペクトル(d)の例

密度勾配型中空ファイバー圧縮システムを設計・構築し、市販のレーザー (Femtopower X, Femtolasers GmbH) と組み合わせる事により、搬送波包絡線位相安定化数サイクルレーザーの構築やそれらを用いた高次高調波発生を行った (図3)。中空ファイバー圧縮後では、パルス幅 3.9 fs (ここではフーリエ限界を仮定)、パルスエネルギー1.0 mJ、搬送波包絡線位相が安定したレーザー光を得るこ



とが出来たが、これは、アト秒物理を展開するためのポンプ光として十分な性能であると共に、実際に光電子分光器に導入し期待通りの性能を確認している。また、高次高調波発生用のチェンバーと軟 X 線斜入射分光器を導入・改良し、高次高調波の発生を確認している (図 3(d))。さらに、波長可変色素レーザーの倍波とフェムト秒レーザーの同期実験を行い、タイミングジッターを 1 ナノ秒以下に抑えることに成功し、応用として新しいタイプの二光子共鳴四光波混合の信号を得ることが出来た。

### 3.2 静電型イオン蓄積リング、光電子分光器、光電子・分子イメージング装置への入射用レーザービームラインの整備

課題指定型理事長ファンド「次世代開拓課題」「粒子ビームと光があやなす最先端科学の開拓」の研究計画を実現するために、上記で整備されたレーザー光を静電型イオン蓄積リング、光電子分光器、光電子・分子イメージング装置に導入するためのレーザービームラインを構築した。この課題では粒子ビームとレーザー光とを組み合わせ、光によって制御された粒子ビームを使った物理、化学、生物を横断するビーム科学を開拓するための基礎を固めることを目的としている。整備を進めているイオン蓄積イオンリングに周回させたイオンビームに対して、様々な波長領域、時間幅、偏光をもつレーザー光を導入することによって、リングに蓄積された生体分子イオンの短時間領域のダイナミクスの追跡のみならず、光による分子配向制御などを行う予定である。本ビームラインでは、空気による自己収束効果、自己位相変調効果、分散効果を避けるため、真空紫外・軟 X 線パルスのみならず、可視・近赤外のフェムト秒レーザーパルスに対しても光学コーティングを施した特殊な窓材を備えた真空ラインを導入した。

### 3.3 不安定粒子寿命の精密測定のためのレーザーシステムの開発

アト秒物理の方法論により、原子・分子・電子等の高速運動を理解することが出来るようになった一方、この方法論により量子電磁力学、超対称性理論等の基礎物理学に対する知見が得られるかは、いまだ未知である。我々は、アト秒/フェムト秒パルス対を用いて基礎物理学定数で表現されるポジトロニウムなどの不安定粒子(状態)の寿命をアト秒の時間精度で直接測定することを狙った全く新しい方法論に基づいた分光システムの構築を開始した。

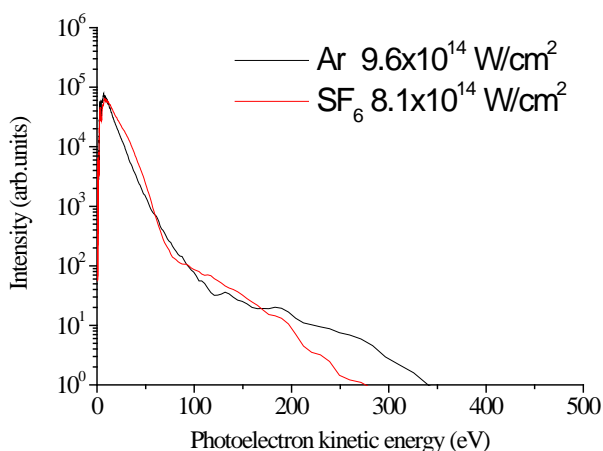


図 4. Ar と SF<sub>6</sub> の光電子スペクトル(25 fs,直線偏光)

### 3.4 飛行時間型光電子分光器を用いた強光子場中での光イオン化過程

強光子場中で起こる原子分子過程を研究する目的で、飛行時間型光電子分光器(e-TOF)を用いて  $10^{14}$  ~  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザー強度のトンネルイオン化過程を調べた。使用したレーザー光のパルス幅は 5fs および 25fs で、偏光条件としては直線偏光と円偏光を用いた。標的としては、多原子分子の強光子場中でのトンネルイオン化過程に注目して、イオン化ポテンシャル  $I_p$  がほぼ同じである Ar ( $I_p=15.76$  eV) と SF<sub>6</sub> ( $I_p=15.32$  eV) を採用した。e-TOF の軸方向へ直線偏光させた場合に得られた光電子スペクトル(図 4) では、低エネルギー側の直接トンネル化で生成された光電子スペクトルは極めて類似の形状を示すが、再衝突過程で生成される高エネルギーの光電子については異なる形状をしている。これは、定性的には電子の後方散乱断面積の違いがスペクトルに反映されていると考えられ、円偏光を用いた比較実験においても、分子のトンネルイオン化を記述する際にしばしば採用される Ammosov- Delone -Krainov (ADK) モデルでは再現できない構造が高エネルギー側に明瞭に観測された。今後、光電子-解離イオン画

像観測装置および 1kHz のパルス分子線を導入し、より詳細な実験への展開を検討している。

#### 4 高速多価重イオンのコヒーレント共鳴励起 (中野, 増永, 東)

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核子あたり 100-400 MeV の多価重イオンをシリコン結晶に通過させ、入射イオン方向に対する結晶の角度を走査しながら、出射イオンの電荷分布、イオンから放出される 2 次電子、さらに脱励起 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目的として実験研究を行ってきた。今後、脱励起 X 線の詳細な角度依存性を観測するために SDD X 線検出器を複数個真空チェンバー内に設置した検出器系の開発を終えた。また入射イオン、X 線、2 次電子間のコインシデンス測定の実施が計画されている。本年度の主要な成果は以下のとおりである。

##### 4.1 薄膜ゲルマニウム結晶

従来結晶標的に採用してきた物質は、その結晶性の品質から、シリコン(Si)に限定されていた。本年度我々は、0.9 ミクロン厚のゲルマニウム(Ge)極薄結晶を用いて共鳴励起実験を初めて試みた。Ge は核電荷  $Z=32$  と Si に比べて倍以上大きく共鳴強度の増大が期待される。460 MeV/u Fe<sup>25+</sup> イオンを通過させて  $n=1 \rightarrow n=2$  への共鳴励起を試みたところ、X 線においても出射イオンの電荷分布においても 2D-RCE, 3D-RCE とともに共鳴の観測に成功した。ただし、共鳴強度は期待したほど増大せず、共鳴幅は広がったことや、特に 3D-RCE では非共鳴励起過程によるバックグラウンドの増大も観測された。これは結晶性が Si ほど良くないことを反映しており、実際に 460 MeV/u Fe<sup>25+</sup> イオンを用いて、面チャネリングさせたところ、臨界角度が Si に比べおおよそ 10 倍に増大していることから、mm オーダーで結晶が湾曲しており全体として結晶性が当初期待したほど良くないことを確認している。しかしながら 10 年以上の間 Si でのみ観測されてきた共鳴励起現象を他の物質によっても確認した意義は大きい。

##### 4.2 高励起状態への共鳴励起

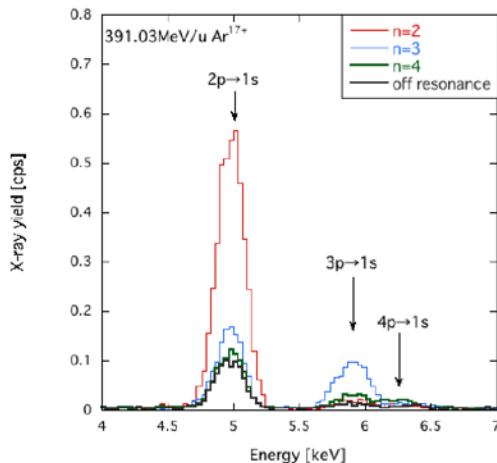


図 5. 水素様 Ar<sup>17+</sup> イオンにおける  $n=2, 3$  及び  $4$  準位への共鳴励起条件下での脱励起 X 線エネルギースペクトル

391 MeV/u 水素様 Ar<sup>17+</sup> イオンを用いて、3D-RCE による高電子励起状態への共鳴励起を観測した。高励起状態は X 線を放出して脱励起するよりも、結晶内の原子との衝突によるイオン化が起りやすいと予想されるが、実際に我々は、イオン化を反映する通過イオンの荷電分布のみならず、脱励起 X 線収量においても共鳴の観測に成功した。特に、基底状態から主量子数  $n=3$  準位に選択的に励起した場合、カスケード過程を経て脱励起する過程を反映して、 $3p \rightarrow 1s$  遷移 X 線のみならず  $2p \rightarrow 1s$  遷移 X 線の増大を確認した。同様に  $n=4$  準位に選択的に励起した場合も同様で、 $3p \rightarrow 1s$ ,  $2p \rightarrow 1s$  遷移 X 線を観測した(図 5)。なお、3D-RCE 実験では、1 ミクロン厚の極薄結晶標的を用いているために、励起したイオンは衝突してイオン化することなしに真空中へ飛び出る可能性も高い。

さらに、2 段階過程を経た高励起状態への励起、すなわちラダー型 2 重共鳴も試みた。過去に我々は、 $1s \rightarrow 2p \rightarrow 2s$  ラムダ型 2 重共鳴や  $1s^2 \rightarrow 1s2p \rightarrow 2p^2$  という 2 電子励起に成功しているが、このような  $n > 3$  の

準位に励起したことはなかった。実験では $n=2, 3$ それぞれへの1重共鳴に加えて、 $n=2, 3$ への同時共鳴条件下における通過イオン電荷分布の変化を観測した。これらの測定から、 $n=1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$ の連続的遷移かより単純に $n=1 \rightarrow 2$ ,  $n=1 \rightarrow 3$ 遷移が同時に満たされているのが議論可能であり、現在詳細な解析を進めている。

-----  
**Key Sentence :**

1. Atomic, and molecular collisions using an electrostatic ion storage ring
2. Exploring atomic, molecular, and photonic physics utilizing the advanced photon sources
3. 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, cluster, merging collision, low-temperature reaction, excited ions, meta-stable ions, radiative cooling, chemical evolution in space, bio-molecular ion reaction, laser spectroscopy, ultra-short-pulsed intense laser, atto-second physics, high-harmonic generation, time-resolved spectroscopy, molecular alignment and orientation technique, coherent control, highly-charged ions, heavy ions, fast ions, channeling, resonant coherent excitation, Okorokov effect, multi-electron excitation, de-excitation x-ray, convoy electron, single crystal

**Outline**

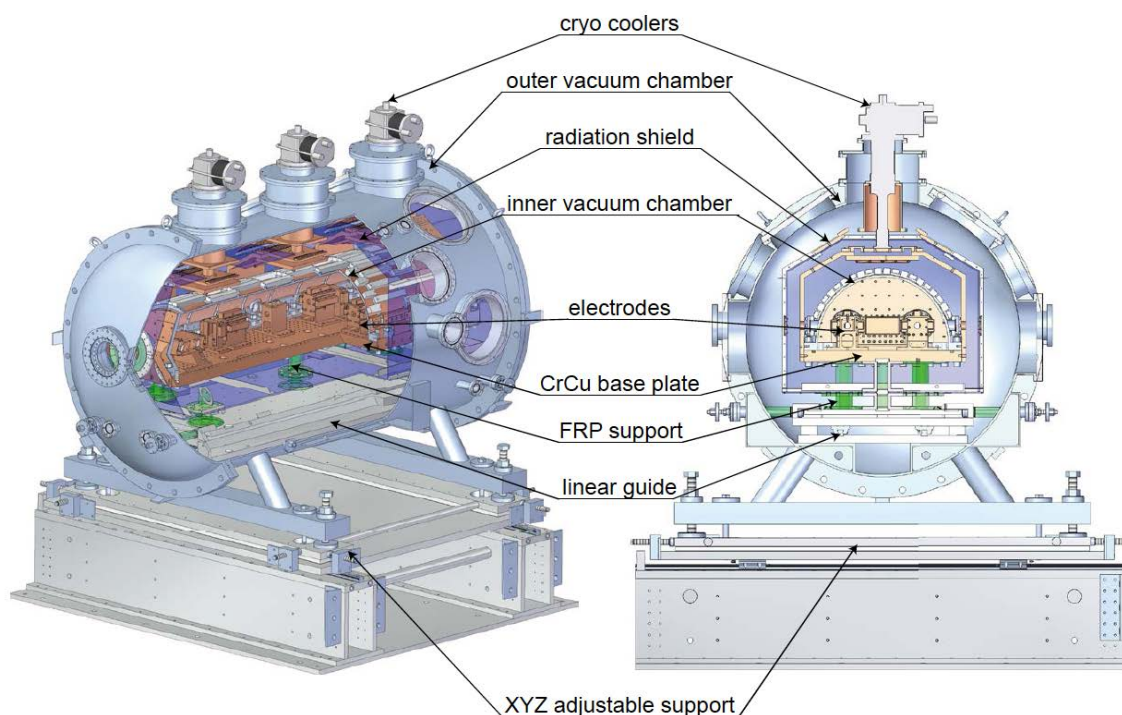
We experimentally study wide-ranged physical processes; cold chemical reaction relevant to universe evolution, dynamics of large complex molecules, atom interaction with a ultra short-pulsed intense lasers and crystals, from new methods and view points of atomic, molecular and optical physics.

We constructed 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 started a new project to perform merging experiments by combining atomic and molecular beams with an ultra-short pulsed intense laser. We have been also trying manipulation of high-energy heavy atomic ions by the crystal periodic fields. We explore fast dynamics in the ultra short time range, and spectroscopy and manipulation of heavy ions in the energy region from EUV to X-rays.

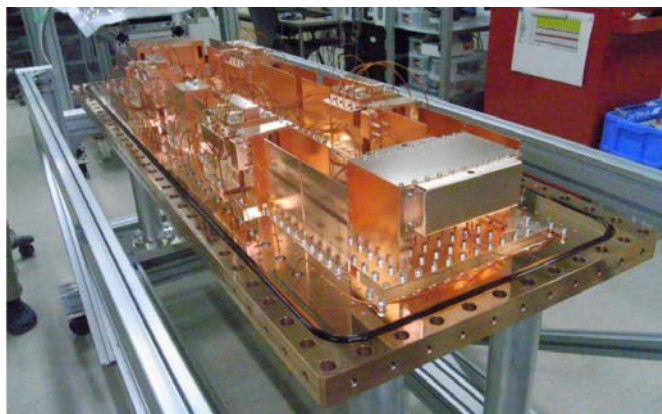
**1. Atomic, and molecular collisions using a cryogenic electrostatic ion storage ring**

**1.1 Cryogenic electrostatic ion storage ring**



**Fig. 1** Schematic view of cryogenic electrostatic ion storage ring





**Fig. 2** Arrays of electrodes placed on the single CrCu plate inside the cryogenic electrostatic ion storage ring

We have developed a cryogenic electrostatic storage ring, which will serve as a core apparatus for the production of a cold molecular ion beam in the Basic Science Interdisciplinary Research Project; Emerging Science Explored by Extreme Beam. The project aims to explore the quantum collision dynamics of the stored molecular ions in the specific vibrational and rotational states by the merging experiments with a beam of the neutral atoms. The cryogenic chamber will provide an extremely high vacuum condition, which offers a much longer storage of the ion beam compared to the room-temperature apparatuses.

The main sections, like an ion storage ring itself, a high vacuum chamber, were manufactured, and we assembled them and tested the performance in vacuum and low-temperature (Figs.1 and 2).

The temperature of the storage ring reached down to 4.9K, which is better than our goal. We are now testing the performance of the vacuum: we have confirmed the order of  $10^{-11}$  Torr by the vacuum gauge at the room temperature region. By adding a cryogenic pump, we naturally expect better vacuum by one order. This means that the vacuum of the main ring in the cryogenic temperature region will attain the order of  $10^{-13}$  Torr.

The development of required additional instruments like power supplies, regulation systems, detectors, are also in rapid progress. After assembling these instruments, we plan the first ion storage experiment in the middle of 2013.

## 1.2 Development of the injection system

In addition to the development of the cryogenic ion storage ring, we simultaneously prepared an ECR highly-charged ion source producing heavy atomic ions for testing the performance of the ion storage ring, an ESI ion source producing molecular ions, together with the beam transport and injection systems combining the ring and these ion sources. The ECR ion source is used for optimization of the applied voltages to the electrodes, adjustment of the pulsed ion injection sequence, and to evaluation of the attained vacuum quality through the ion storage time measurement. The molecular ions generated in the ESI ion source are stored for the ion temperature diagnosis through the absorption spectrum measurement with a merging tunable laser.

At the downstream of the ESI ion source, we prepared the cryogenic ion trap in order to pre-cool the ions and to increase the number of them. The pre-stored ions are cooled by the gas collision under the environment surrounded by the 4K electrodes cooled by a GM cooler device. The cooled ions will be extracted and accelerated in a pulse mode by the pulsed high-voltage application, and guided into the ring. In this year, all parts and instruments are ready now, and their assembling is scheduled in the early stage of 2013.

## 2 Atomic, and molecular collisions using a room-temperature electrostatic ion storage ring

### 2.1 Lifetime measurement and spectroscopy of negative linear hydrocarbon ions and carbon cluster ions

To study the electron detachment and radiative de-excitation processes of the negative molecular ions found in cold universe, we studied especially  $C_5^-$ ,  $C_6^-$ , and  $C_6H^-$  ions. We have measured the lifetime of these ions stored in a room-temperature ion storage ring in Tokyo Metropolitan University (TMU) by monitoring the time-dependent neutral product yield. We understood the whole dynamics of the delayed process of these isolated molecular ions in the time range slower than ms.

Large-sized negative molecular ions are generally in the hot temperature, namely in the high vibrational states with large inner energy. Electron detachment of negative ions takes place when they hold the



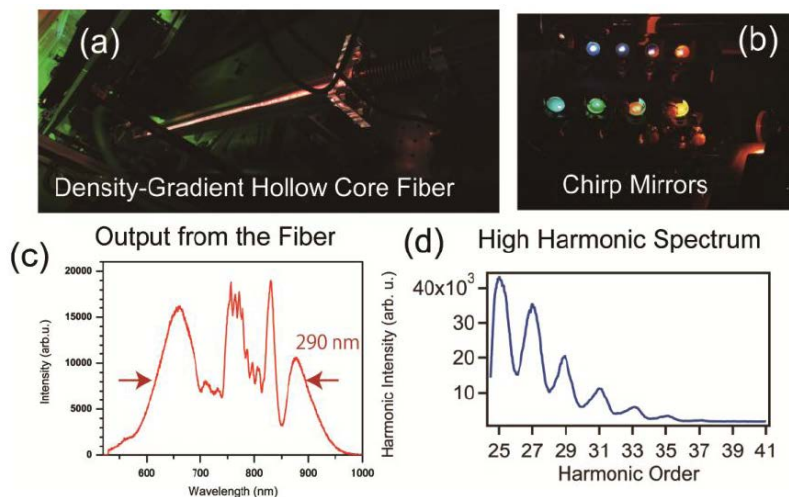
internal energy above the electron affinity. It is known that this process proceeds statistically through the delayed process, and the rate is determined as a function of the internal energy, often termed as the thermionic emission; namely, the faster rate for the higher internal energy, and vice versa. Thereby, we can obtain the information of the internal energy by observing the time dependent behavior of the electron detachment of the ions.

Previously, existence of the metastable state dependent on the even-odd parity of the carbon numbers ( $n$ ) has been pointed out for the linear carbon cluster ions ( $C_n^-$ ), and the observed lifetime of the negative ions was supposed to reflect this property. However, we found from experiments and theoretical simulations that the relatively small ions of  $C_5^-$ , in a similar way as the large-sized ions, experience the delayed process statistically resulting in electron detachment. This fact leads to the conclusion that the specific metastable state is not involved in the cooling process. In comparison of  $C_6^-$  and  $C_6H^-$  ions, we confirmed that the  $C_6H^-$  ions shows a similar behavior as the  $C_5^-$  ions, while the cooling process of the  $C_6^-$  ions is not explained by such delayed process solely. The candidate of the contributing process is not by IR photon emission between vibrational levels, but the cooling process by emitting a visible photon that decreases the energy to a large extent. Indeed our simulation suggests that the low-energy electronic excited states contribute to cooling heavily for  $C_6^-$ , but no such state exists for  $C_6H^-$ . Thus, it was revealed that negative carbon cluster negative ions show a drastic difference in their cooling process depending on the H atom addition or not. The experiments using an ion storage ring play a crucial role in studying the slow process which is important but not fully understood due to the lack of the experimental technique, and this approach is expected to be more important in the cryogenic ion storage ring under development in RIKEN.

### 3 Exploring a new Atomic, Molecular, and Photonic Physics utilizing the advanced photon sources

We installed and developed a femto-second laser, an atto-second laser, a wave tunable nano-second laser, and evaluated their performance together with synchronization. Laser beam transport lines into target chambers were prepared, and experiments using these laser systems have started as described below. In addition, aiming AMO physics experiments with an x-ray free electron laser (XFEL) developed at RIKEN Harima, we performed photoelectron/molecular imaging experiments using the XFEL in collaboration with the KEK atomic physics group.

#### 3.1 Development of a CEP stabilized a-few-cycle laser and an atto-second pulsed photon source



**Fig. 3** A density-gradient hollow core fiber suppression system (a,b) and an example of the obtained a few cycle pulse obtained (c), and HHG spectrum (d)

We designed and assembled a density-gradient hollow core fiber compression system. By combining it with a commercial laser (Femtopower X, Femtolasers GmbH), we constructed a carrier envelop phase-stabilized a few cycle laser, and produced a high-harmonic generation (HHG) (Fig.3). As specification, we attained a pulse width of 3.9fs (assuming Fourier limit), pulse energy of 1.0mJ, with stabilization of carrier envelop phase (CEP) at the stage after hollow core fiber compression, This satisfies a requirement for a pump laser to explore the atto-second physics. We have already confirmed a good performance as expected by using a photoelectron spectroscopy device. By introducing a specific chamber dedicated for HHG and a soft x-ray grazing incidence spectrometer, we indeed observed HHG

(Fig.3(d)).

In addition, we synchronized a second order harmonic of the wave-tunable dye laser and the femto-second laser, and succeeded in obtaining a new type of signal of two-photon resonant four-wave mixing by suppressing timing jitter less than 1ns.

### 3.2 Development of the laser beam line for injection into an electrostatic ion storage ring, an photoelectron spectrometer, and a photoelectron/molecular imaging devices

To realize the research project of the Strategic Programs for R&D; Exploring Advanced Science by Combination of a Particle Beam and Photon, we constructed a laser beam line to introduce the developed laser into an electrostatic ion storage ring, an photoelectron spectrometer, and a photoelectron/molecular imaging device. The main purpose of the present research project is to establish a fundamental experimental basement for exploring interdisciplinary beam science covering physics, chemistry, biology using particle beams well controlled by photon in a combination of particle beam and laser. By introducing lasers with wide range of wavelength, pulse width, and polarization into stored ions in the ion storage ring, we plan investigation of the dynamics of bio-molecular ions in the short time range as well as their alignment and polarization control by photon.

To avoid self-focusing effect by air, self phase modulation, and dispersion effects in the beam line, we installed the specially manufactured window with optical coating for VUV, soft x-ray pulsed, visible, near IR femtosecond laser pulse.

### 3.3 Development of the laser system for precision measurement of lifetimes of unstable particle

By the methodology of atto second physics, we can understand rapid motion of atom, molecule, and electron. However, it is not well explored whether this provides valuable information on fundamental physics like quantum electrodynamics, super symmetry theory. We started development of a spectroscopy system based on a new strategy aiming for direct measurement of the decay lifetime of unstable particles (or states) like positronium, which is described by the fundamental physics constant, using a combination of pair of atto second and femto second pulses.

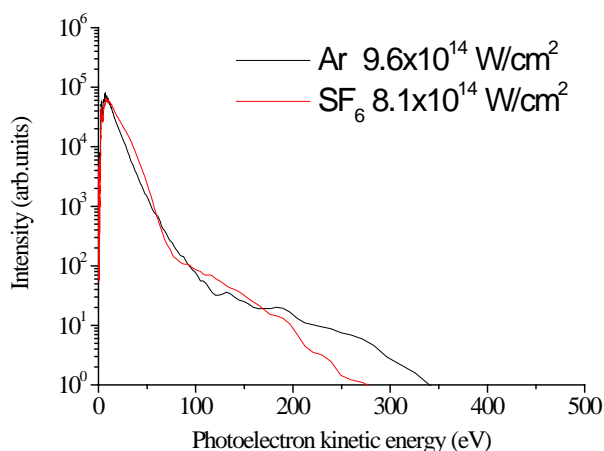


Fig. 4 Photoelectron spectra for Ar and SF<sub>6</sub> irradiated by a 25fs linear polarized laser

### 3.4 Photoionization process in the intense photon field using a TOF type photoelectron analyzer

To study atomic/molecular ionization process under the intense photon field, we measured the tunneling ionization process of isolated atoms and molecules under the laser intensity of  $10^{14} \sim 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, using a time of flight type photoelectron analyzer (e-TOF). The pulse width of the laser was 5 fs and 25 fs, respectively, under linear and circular polarization conditions. For a target, we adopted Ar (Ip=15.76 eV) and SF<sub>6</sub> (Ip=15.32 eV), the ionization potential of which is similar.

In photoelectron spectra for the linear polarization along the e-TOF axis (Fig. 4), the behaviors in the low-energy side originated from the direct tunneling ionization are quite similar for Ar and SF<sub>6</sub>, however, those in the high-energy side from the scattering process are different. This is qualitatively explained by the difference in the electron back scattering cross section.

In the case of circular polarization, the characteristic feature was found in the high-energy side, which is not explained by the Ammosov- Delone –Krainov (ADK) model often used for molecular tunneling

ionization. Now we plan extensive experiments by introducing photoelectron-fragment ions 2D-velocity mapping device and a 1kHz pulsed molecular beam.

#### 4. Resonant coherent excitation of fast highly charged ions

A fast ion traveling through a single crystal feels a 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 100-400MeV/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, secondary electron released from the ions, and de-excitation x-rays from the excited ions while we change the angle between the incident ion beam and the crystal.

In this year we installed multiple SDD x-ray detectors in the vacuum chamber, and relevant devices to measure the detailed angular dependence of the de-excitation x-rays. Coincidence measurements between incident ions, x-rays, secondary electrons are also scheduled in 2013. The major results in 2012 are described as follows.

##### 4.1 A thin Ge crystal target

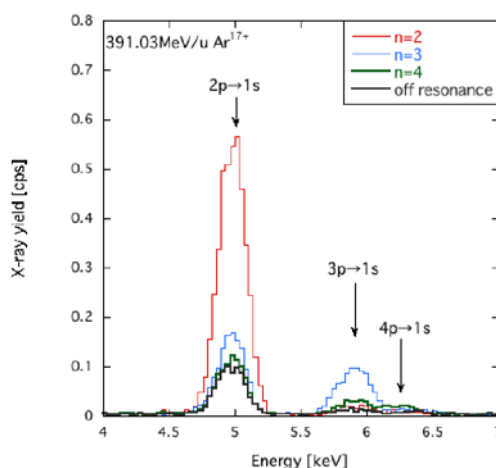
For a long period, the material adopted for the crystal targets, has been limited to silicon (Si) due to its high quality in crystal perfectness. In this year, we for the first time performed RCE experiments using an extremely thin (0.9 micron-thick) Germanium (Ge) crystals. Germanium has nuclear charge of 32, more than twice larger compared with Si, and we had expected enhancement of the resonance intensity.

We succeeded in observing the RCE from  $n=1$  to  $n=2$  of 460 MeV/u  $\text{Fe}^{25+}$  ions passing through the Ge crystal by measuring charge state distribution and de-excitation x-ray yield for the case of 2D-RCE and 3D-RCE.

However, the observed resonance intensity was not so large as expected, and the resonance width was also broadened. In the case of 3D-RCE, the background originating from the non-resonant excitation process increased. This reflects a poor quality of the Ge crystal compared with Si. We observed the critical angle of the planar channeling is indeed 10 times larger than Si, which suggests the curvature of the mm order. Nevertheless, this result was regarded to be a critical milestone for RCE experiments from the viewpoint of the first experiment using a crystal other than Si.

##### 4.2 The higher state resonance of H-like Ar ions

We observed the excitation into the higher  $n$  states using 3D-RCE for 391 MeV/u H-like  $\text{Ar}^{17+}$  ions. Highly excited states are more likely ionized by the collision with target atoms rather than de-excitation by emitting x-rays. We succeeded in observing resonances not only in de-excitation x-ray yield, but also in the charge-state fraction. When we selectively excited the ion into  $n=3$  state, we could observe an increase of the yield of  $2p \rightarrow 1s$  de-excitation x-rays in addition to the one of  $3p \rightarrow 1s$  x-rays reflecting the cascade process. In the case of the excitation into the  $n=4$  state, enhancements of the x-rays of  $3p \rightarrow 1s$ ,  $2p \rightarrow 1s$  were also observed. In 3D-RCE measurements we use a thin Si crystal of 1micron thickness, and excited ions has a chance to leave from the target into vacuum escaping collisional ionization. This leads to enhancement of x-rays emission compared to ionization.



**Fig. 5** De-excitation x-ray energy spectra under the resonance condition from the ground state to  $n=2, 3$  and 4 states of H-like  $\text{Ar}^{17+}$  ions



We also challenged the excitation into the higher  $n$  states via the two-step process, that is, the ladder-type double resonance. Previously, we succeeded in the  $\sigma$ -type double resonance of  $1s \rightarrow 2p \rightarrow 2s$ , or the 2-electron excitation of  $1s^2 \rightarrow 1s2p \rightarrow 2p^2$ , but we have not tried the ladder-type resonance to higher  $n$  excited states of H-like ions previously. We measured the charge-state fraction spectra for a double resonance of  $n=2$  and 3 as well as single resonances to  $n=2, 3$  respectively. We confirmed large enhancement under the double resonance condition. By comparing this yield with those of the single resonances, we can discuss whether the observation is described by  $n=1 \rightarrow 2 \rightarrow 3$  sequential double resonance or simply by the sum of  $n=1 \rightarrow 2, n=1 \rightarrow 3$  transitions. We also tried the ladder-type double resonances for the  $n=1 \rightarrow 2 \rightarrow 4$  transition. Detailed analysis is now under way.

***Principal Investigator***

東 俊行 Toshiyuki Azuma

片山 光浩

Mitsuhiro Katayama

小山 昭雄

Akio Koyama

***Research Staff***

小林 峰 Takane Kobayashi

中野 祐司 Yuji Nakano

大下 慶次郎 Keiji Ohshimo

金井 恒人 Tsuneto Kanai

榎本 嘉範 Yoshinori Enomoto

後藤 基 Motoshi Goto

増永 拓也 Takuya Masunaga

水野 智也 Tomoya Mizuno

***Students***

須田 慎太郎 Shintaro Suda

安田 知世 Tomoyo Yasuda

井上 研二 Kenji Inoue

大橋 朋紘 Tomohiro Ohashi

丹波 大樹 Daiki Tamba

田山 健 Ken Tayama

渡邊 千嘉 Chika Watanabe

***Assistant and Part-timer***

高野 由加 Yuka Takano

佐藤 利恵 Rie Sato

***Visiting Members***

粟屋 容子 Yohko Awaya

木村 一字 Kazuie Kimura

田沼 肇 Hajime Tanuma

城丸 春夫 Haruo Shiromaru

間嶋 拓也 Takuya Majima

松本 淳 Jun Matsumoto

古川 武 Takeshi Furukawa

丑田 公規 Kiminori Ushida

馬場 守 Mamoru Baba