

解 説

原子分子衝突研究を目的とした 液体窒素冷却静電型イオン蓄積リング

東 俊行^{*1}・田沼 肇^{*1}・神野 智史^{*1}・城丸 春夫^{*2}

A liquid nitrogen cooled electrostatic ion storage ring for atomic/molecular collision research

Toshiyuki AZUMA^{*1}, Hajime TANUMA^{*1}, Satoshi JINNO^{*1} and Haruo SHIROMARU^{*2}

Abstract

A new electrostatic ion storage ring (TMU E-ring) has been constructed by collaboration of atomic physics and cluster chemistry groups in Tokyo Metropolitan University. The compact-sized ring has a race-track-type shape of about 7.7 m in circumference, and is able to store the ions of the energy up to 20q keV. Large molecular/cluster ions are stored taking an advantage that the electrostatic ion storage ring is free from the limit of mass of circulating ions. The region of the ion trajectory is cooled down to the liquid nitrogen temperature to quench vibrationally excited ionic states of large molecules through infrared radiation. We have started the lifetime measurement of meta-stable molecular ions as well as the laser spectroscopy of huge molecular ions adopting a visible tunable laser.

1. はじめに

首都大学東京・原子物理グループおよびクラスター化学グループは、共同で原子・分子物理実験専用の静電型イオン蓄積リング (TMU E-ring) の設計開発および製作を行い、現在様々な実験を展開している¹⁾。静電型イオン蓄積リングは、非常に重いイオンすなわち多原子分子イオンやクラスターイオン、これまでビームとして扱われたことのない生体分子イオンまでが蓄積可能である。我々はこの点に着目し、レーザービームや他の粒子ビームと衝突させることによって、巨大分子イオンを原子レベルで研究することを目標としている。さらに、イオン蓄積リングのビーム軌道の周囲全体を液体窒素温度まで冷却することにより、分子イオンをほぼ振動基底状態にまで冷却可能な装置を開発した。

本解説では、静電型イオン蓄積リング開発の目的や背景、および内外の状況を説明した後、我々の TMU E-ring について、動作原理や全体の設計仕様、冷却方式、イオン入射系を紹介する。さらに希ガスイオンやクラスターイオンを用いて行った様々な入射方式に

よる蓄積、バンチ化テストの結果を述べる。最後に現在進行中である、準安定状態の分子イオンの寿命測定や生体分子イオンのレーザービームとの交差実験について述べる。

2. 研究の背景

元来、イオン蓄積リングは高エネルギー荷電粒子を蓄積し、高エネルギー実験や核物理実験のために利用することを目的として発展してきた。そこではビームのエミッタンスを向上させ、運動量拡がりや抑制するために、蓄積イオンの位相空間に占める粒子密度を上げるいろいろな冷却技術が駆使されてきたことはいまでもない。1990年以降、イオン蓄積リングは原子物理実験にも導入され、大きな成功を収めた。この原因には、

- 1) ビームが周回するため実質的ビーム強度が強いこと
- 2) 電子クーラーによるビーム冷却、すなわちイオンビームの平均速度と等速の電子ビームをイオンに重ねて走らせ、イオン・電子散乱を通じて冷却する手法によって、ビームエミッタンスやエネ

^{*1} 首都大学東京都市教養学部物理学コース Department of Physics, Tokyo Metropolitan University (azuma@phys.metro-u.ac.jp)

^{*2} 首都大学東京都市教養学部化学コース Department of Chemistry, Tokyo Metropolitan University

ルギー分解能が圧倒的に向上したこと

- 3) ビーム冷却用に導入した電子クーラー自身をイオン・電子散乱実験の電子標的として利用可能であり、衝突によって中性化した粒子は直進するため容易に検出されること

などが相まっている。一方で、これらのリングは基本的に高エネルギー実験のための蓄積リングをモデルとしており、磁場によってビームの偏向と収束を行っている。磁場型リングでは、イオン軌道は \sqrt{mE}/q (m : 質量, E : エネルギー, q : 価数) に支配されるためイオンの質量が増すと蓄積が難しく、低価数の重イオンを回すことができない。ところが磁場を使わずにすべてを静電的に制御するイオン蓄積リングでは、イオン軌道は E/q に支配され、一定のエネルギーに対してイオンの質量に関係しない。そのため重いイオン、すなわち多原子分子イオンやクラスターイオンを蓄積できる。むしろ同じ電場で同一軌道を周回させれば、蓄積イオンの質量が増すにつれてその速度は遅くなる。しかしながら、高エネルギーで粒子を衝突させることを目的としない原子・分子物理実験には差し支えない。

ここで蓄積されたイオンは、イオン源から入射する際に数 10 kV の電位差によって得た並進エネルギーを保持して周回し続ける。ところが、分子イオンの場合には並進エネルギーの冷却だけではなく、いわゆる分子の振動や回転という内部エネルギーを抑制・制御することが一つのキーポイントになる。例えば、レーザーアブレーションで生成されたクラスターイオンはその生成時には温度に換算して数千度という高温状態にある。このまま真空中にイオンとして取り出し、レーザー分光によって振動状態を観測しようとしても、得られるスペクトルは幅広で構造を持たないため詳細な情報が取り出せない。しかしながらこれをイオン蓄積リング内の真空中で保持することにより赤外放射を経て冷却できれば、周囲の環境温度で平衡に達する。典型的な振動励起準位は 0.1 eV (800 cm^{-1}) のオーダーであり、小さな 2 原子分子イオンは室温では大半が振動基底準位に脱励起する。先に述べたクラスターのような大きな分子イオンではこれは当てはまらず、環境温度を液体窒素温度に冷却して初めて振動基底準位への脱励起が可能になる。

またイオン蓄積リング周囲軌道の途中に直線部分を設けることにより、レーザー、電子、中性粒子との合流衝突実験が可能である。磁場型のイオン蓄積リングでも同様であるが、中性生成物あるいは価数の変化した生成物が一定速度をもって飛行するため、これを実

験的に検出するのが容易である。これはイオントラップ技術では達成できない大きな利点である。このほかにも静電型イオン蓄積リングは様々な利点を備えている。例えば、

- 1) 磁場型リングと同様にビームが周回するため実質的ビーム強度が強い。
- 2) リング内は 10^{-9} Pa 以上の超高真空中で運転するためバックグラウンドが少ない。
- 3) 静電型ではリングの大きさを、基本的に磁場の場合よりずっと小型化でき、ヒステリシスのない再現性の良い装置ができる。

といった点が挙げられる。

静電型イオン蓄積リングの以上のような特徴を生かし、溶媒等の影響のない真空中で、しかも振動状態がほぼ基底状態にあるいわば凍りついた分子イオンを実験道具として用意できるため、様々な分子イオン、クラスター分子や生体分子イオン固有の性質や、電子や中性粒子などとの衝突におけるエネルギー微分衝突断面積を調べることが初めて可能になる。さらに、イオンの典型的蓄積時間は数秒から数分にまで及ぶため、この領域の時間分解測定に有利である。小さな分子イオンから巨大分子イオンまでにいたる準安定状態の寿命や、電子、中性原子、正負イオン、光子との相互作用の研究は、未開拓の原子分子衝突物理・化学を切り開く可能性のある大変有望なテーマである。我々は、その第一歩として、静電型イオン蓄積リングを液体窒素温度にまで冷却することを目的とし、原子分子イオンの寿命測定とともに、波長可変レーザーと合流衝突することにより振動状態分光からその構造を研究することを開始した。

この静電型イオン蓄積リングは、1997 年、デンマーク・オーフス大学において S. P. Møller によって先駆的に開発された²⁾。ELISA と命名されたこのリングによって、真空中に取り出した C_{60} 等のクラスターイオンの脱励起過程のダイナミクスの研究³⁻⁸⁾ や、生体分子イメージングに必須である緑色の蛍光を発色する GFP (Green Fluorescent Protein) のような生体蛍光分子に対する真空中でのレーザー分光⁹⁾ など多くの成果が得られている¹⁰⁾。これに引き続いて、国内でも静電型イオン蓄積リングが KEK において田辺徹美氏により建設された^{11,12)}。田辺氏は東大原子核研究所において開発されたイオン蓄積リング TARN-II を駆使して、原子物理のイオン・電子衝突における解離性再結合についてのすばらしい成果をあげた¹³⁾ が、TARN-II のシャットダウン後、小型の静電型イオン蓄積リングの開発に移行した。主に DNA や

タンパク質イオンと電子の衝突反応の研究を開始し、共鳴的なペプチド結合の切断などの観測結果を生み出している¹⁴⁻¹⁶⁾。

現在製作が実際に進行しているものにはスウェーデン・Manne-Siegbahn 研究所の DESIREE がある¹⁷⁾。これも磁場型イオン蓄積リングの CRYRING がシャットダウンした後に、小型の静電型イオン蓄積リングに移行しようというものである。DESIREE はリングを2個用意し、これらに蓄積されたイオン同士を衝突させるイオン・イオン衝突実験を狙ったものであり、リング全体を一体型の容器に閉じこめ液体 He 温度に冷却する計画である。また、ドイツ・ハイデルベルグの Max-Planck 研究所では、約 10 m × 10 m というサイズの静電型イオン蓄積リング全体を液体ヘリウム温度に冷却するというクライオ技術の極限を目指す野心的な計画 (CSR: cooled storage ring) が進行中である¹⁸⁾。これらの計画は分子イオンの振動のみならず、1 meV (8 cm⁻¹) オーダーの回転状態準位をも制御しようとする試みである。我々はテーブルトップサイズに小型化されたからこそ、全体を冷却するという発想が出たわけであるが、あとに続く計画はどんどん大型化、低温化している。このほかにもドイツでは Frankfurt 大学や GSI でも静電型イオン蓄積リングの開発計画が机上にのぼっており、今後 10 年以内に 10 台近くの装置が登場する可能性がある。このように静電型イオン蓄積リングの潮流は世界的なものであり、例えば、ビーム冷却の国際ワークショップでも原子分子実験をその対象とする静電型イオン蓄積リングに関して1つのセッションが設けられたり¹⁹⁾、Electrostatic Storage Device の第1回国際ワークショップが開催されたり²⁰⁾と活発な動きが見られる。

3. 設計仕様

3.1 全体の構成

首都大静電リング (TMU E-ring) は大きく分けて、

リング本体、蓄積するイオンを生成・入射する入射系、およびビームモニター系の3つに分けられる。リング本体の形状は周回長 7.736 m のレーストラック型であり、1つの架台の上に設置した卓上型である。2個の大型チェンバーを2カ所の直線部で結合する形で設計されており、電場のない直線部は長さ約 1200 mm、大型チェンバーは高さ 400 mm、直径 800 mm である。その内部構造の概略を図1に示す。入射イオン源に、静電的に高圧を加えることによってイオンを加速しており、通常の運転モードでは印加電圧は 20 kV であるため、q 価イオンの到達エネルギーは 20q keV である。従って、イオン周回時間は陽子に対して 3.94 μs であり、より重いイオンに対しては質量の平方根に比例して増大する。リング本体へと入射されたイオンは偏向電極の偏向電場と4極電極の発散収束電場によって周回軌道をとる。ビーム偏向のためには2つの 160°円筒型偏向電極 (160° DEF) と4つの 10°平行平板偏向電極 (10° DEF) を使い、大型チェンバー内部にはこれら 160° DEF と 10° DEF が組み込まれている。160°偏向部の電極形状としては、他の静電型イオン蓄積リングと同様に円筒型を採用した。ビーム入射部に設置されている 10° DEF は、イオン源部からリング内にイオンをパルス入射する際に電場を OFF にし、イオン周回時には一定の電場を与えるというスイッチング・モードで使用される。また、水平、垂直方向の収束、発散には2組の4重極電極 (QD, QF) を使い、このペアを4セット用意した。直線部の長さなどいくつかの点が変更されていることを除くと、このラティス構造は、基本的に既に開発された ELISA や KEK のリングと同じである。TMU E-ring 独自の特徴は大型円形チェンバーを用意したことであり、電荷変換によって生成する価数の異なるイオンが周回条件から外れるものを観測するための2次元位置検出器を挿入する予定である。さらに後述のように液体窒素冷却のために電極等が3重

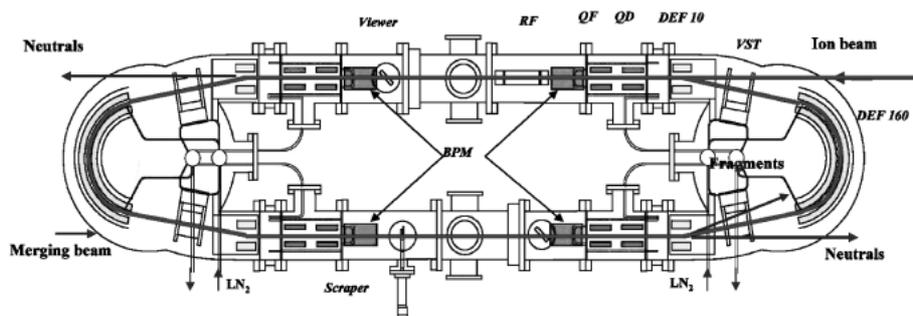


図1 TMU E-ring 全体のレイアウト。

シールド構造で構成されていることが特徴である。電極のチャージアップを回避するために、すべての電極には金メッキを、後述のビーム位置モニターには金蒸着を施した。ビームを安定に周回させるための、電極の幾何学的配置や印加電圧条件を決定するために、ラティス構造の最適化を、マトリックス計算プログラムコードを用いて行った後、ビーム軌道追跡プログラム (SIMION) によってもこれを確認した。ビームの安定周回に必要な条件として、基本的に大きく分けて4つの安定領域が存在する。ビームサイズは安定領域ごとに大きく変化するが、最小ビーム径は数 mm 以下にはならない。なお、我々は正イオンだけではなく負イオンも蓄積するが、これは当然すべての電場の極性を反対にすることで達成される。

3.2 ビームモニター系

TMU E-ring は直線部の電場のない領域にレーザー、電子、中性粒子等を入射すると、周回イオンとこれらのビームの合流衝突実験が可能である。また直線部チャンバー側面から多価イオン等のビームを交差させることも可能な設計になっている。これらのビームとの衝突、残留ガスとの衝突、あるいは励起状態からの解離によって生成された中性粒子は、電場によって偏向されずに直進し、直線部延長上に設置された中性粒子検出器によって観測される。具体的には MCP (Multi Channel Plate) と蛍光板の組み合わせによって測定する。中性粒子入射によって MCP 入り口で生成した2次電子は MCP で増幅され、最終的に蛍光板を発光させる。粒子入射時の時間情報は MCP からの直接信号で得ることができ、2次元位置に関しては蛍光板の発光信号を CCD カメラによりデジタル化して読みとることによって情報を引き出している。

さらにリング内を周回しているイオンビームを非破壊的に観測するために円筒を4分割した電極から構成される pick-up 型のビーム位置モニター (Beam Position Monitor, BPM) が4箇所設置されている。これらによりリング内を周回しているイオンビームの重心位置や周回時間構造が非破壊的に観測される。

3.3 超高真空化および真空排気系

イオンを長時間蓄積するためには、残留ガスとの衝突によるビーム損失を防ぐためイオン蓄積リング内を超高真空状態に保つ必要がある。そのため TMU E-ring には6台のゲッターポンプと4台のイオンポンプを取り付け排気している。粗排気過程においてはターボ分子ポンプとそれにタンデムに取り付けられたオイルフリーなスクロールポンプにより排気される。また、真空チャンバー壁面からのガス放出を軽減する

ために壁面は鏡面仕上げになっており、組み立て前の段階ですべての部品を真空中、900°C の条件の下でベーキング処理を行った。

リング組立後さらに、内部のガス出しのために真空条件下でベーキングを行った。2個の大型チャンバーはマントルヒーターで周囲を覆い、直線部については、発熱型のフィンヒーターを用意し、全体を1個の直方体の断熱材で囲った。さらに均一な温度分布を持たせるため、直方体断熱材の上部にファンを取り付け、熱が均等に分配されるようにした。ベーキング終了後、極高真空計測用のエキストラクターゲージで測定した結果、 3×10^{-9} Pa の超高真空を達成している。部品の段階と組み立て後の2段階に及ぶベーキング処理がガス放出率の減少に結びついたと考えられる。

3.4 液体窒素温度冷却

周回ビーム周囲の環境を液体窒素温度にまで冷却するため、2系統に分かれてリング内に張り巡らせた配管に液体窒素を流入循環させる。この配管は低温冷却部と呼ばれている構造物と接合しており、配管に液体窒素を流入することで低温冷却部は冷却される。低温冷却部はビーム軌道の約80%を覆い、リング内各電極全てを内部に取り込むように設計されており、電極も同時に冷却される。この手法はリング全体を液体窒素に浸す方式と比較して、液体窒素消費量を大幅に軽減することができる。内部構造の代表例として4重極電極の断面写真を図2に示す。チャンバーと低温冷却部の間には熱シールドと名付けられた厚さ2 mm程度の板がさらに挟まれており、基本的に3重構造になっている。なお、熱シールド板やチャンバー内壁の表面積は非常に大きいため、伝熱形態は熱伝導より熱輻射による寄与が大部分を占める。低温冷却部はチャンバーから延ばされた熱伝導率の低いチタン合金を使

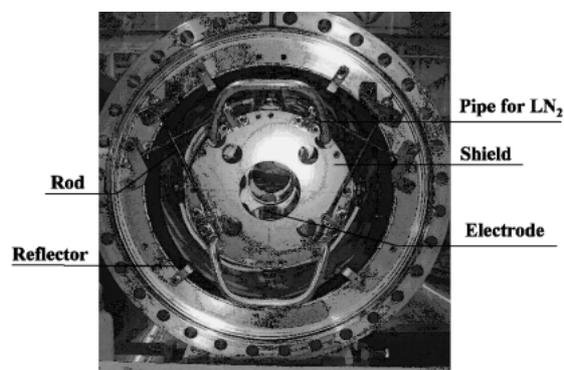


図2 4重極電極部断面図。

用した細い支持棒によって支えられている。各電極は低温冷却部から絶縁スペーサーを介して支持されている。

実際には、各電極及び熱シールド板は約 70 時間程度で液体窒素温度の熱平衡状態に到達する。熱平衡に達するまでに片側で約 20 liter さらに保持に数 liter/hour の液体窒素が必要である。このように少ない液体窒素消費量は、低温冷却部と熱シールド板の 2 重シールド構造による高断熱性に起因すると考えられる。現在は液体窒素再凝縮循環装置を導入して液体窒素供給を自動化している。

希ガスイオンビームの蓄積寿命と各電極部の温度の関係を測定したところ、常温から液体窒素温度までビーム寿命には変化が観測されなかった。これは超高真空下では 4 重極質量計でモニターしても明らかのように、残留ガスの主成分が水素であるため、寿命を決めている残留ガス密度、すなわち真空度は液体窒素を導入しても変化が見られないことで説明される。ただし、ビーム位置は数 mm 程度電極の収縮に伴って動く。これは電極に与える電圧を調整することで容易に再び中心軸に移動させることができる。

3.5 ビーム入射系

我々は正負原子、分子イオンやクラスター負イオンなど様々なイオン種を実験対象としているため、複数のタイプのイオン源を必要とする。そのため、入射ビームライン上に最大 3 台のイオン源の設置を可能にする 4 極電極とアインツェルレンズで構成されている入射ビームラインレンズ系を配置し、取り出しイオン源を自由に選択できるようにした。イオン源の一つには、正負の原子イオンあるいは比較的小さな分子イオンを取り出すためにデュオプラズマトロン型イオン源を採用した。これにより生成されたイオンビームはアインツェルレンズで整形された後、平行平板電極によりパルス化される。その後、電場と磁場を直交する方向に印加するウインフィルターによって入射イオン種が質量選別され、静電型レンズ系で整形された後にリング内に入射される。ここでイオン源は低真空で動作するのに対し、リング本体は前述のように超高真空を保持する必要がある。そこで、ビーム入射系では複数の排気装置による 4 段の差動排気を行っており、各段にターボ分子ポンプを用いた。

また TMU E-ring の特徴として、入射イオン種を選択にも基本的に磁場を用いない構成を試みた。クラスターイオン生成にパルスレーザーによるレーザー脱離法を採用し、レーザー照射の時間に同期させて高圧パルスを加えて加速した。この手法は定常状態ではイ

オン源を高圧に保持する必要がない。さらには後述のように生成したすべての種類のイオンをパルスのようにリングに入射し、これらのリング周回周期を pick-up 型 BPM により測定しフーリエ変換を施すことにより質量分析するというユニークな手法を試みた。

4. イオン蓄積テスト

4.1 入射周回テスト

平成 16 年 1 月より、デュオプラズマトロン型イオン源より取り出した Ar^+ ビームをパルス化して蓄積リングに打ち込み周回テストを開始した。平成 17 年末現在では、既に He^+ , Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ , Xe^+ の希ガスイオン, CO^+ , CO^{2+} , CO_2^+ , CO_2^{2+} , NO^+ , NO^{2+} , O_2^+ といった 1 価あるいは 2 価の正分子イオン, C_{60}^+ , C_{70}^+ , C_{84}^+ , C_{60}^- , C_{70}^- , さらに正負ポリフィリンイオンなどの大型分子イオンの蓄積を行った。図 3 に中性粒子検出器で観測した様々な希ガス蓄積イオンの減衰スペクトルを示す。このように寿命にして数秒から数 10 秒、すなわち約 1 分間以上の蓄積が可能である。この寿命は残留ガスとの弾性散乱によって周回軌道からイオンが外れることが主な原因であり、周回イオンの質量が増加するにつれてイオンの速度が下がり、時間あたりの残留ガスとの衝突頻度が減少するため寿命が延びる。我々はリング内に He ガスを導入し蓄積寿命の He ガス密度依存性を測定することで、ビーム寿命が概ね弾性散乱で説明できることを確認している。ただし、 Ar^+ イオンの場合はこの重さの順番から逸脱してはよい減衰が測定されている。これは、 Ar^+ と残留ガスの主成分である水素との電荷移行断面積がこのエネルギー領域で他の希ガスよりかなり大きく、この場合には電荷移行過程も寿命に寄与していると推測している。

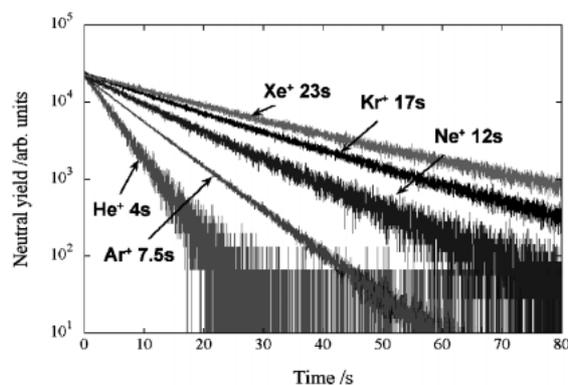


図 3 中性粒子検出器によって観測された希ガスイオンビームの減衰スペクトル。

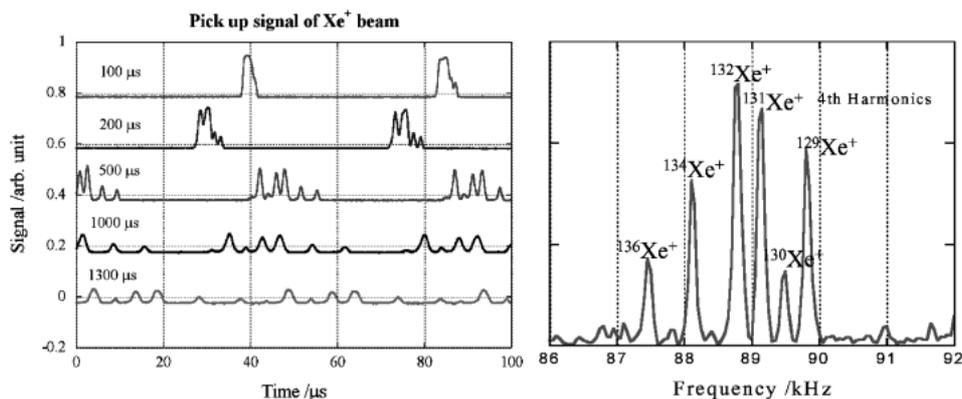


図4 pick-up型BPMによって観測されたXe⁺イオン周回信号およびそのフーリエ変換スペクトル.

さらにビーム強度依存性も測定した. ビーム強度175 nA 以上において空間電荷効果の影響が現れ, 急激な減衰を示すことを確認した. 我々の実験にとって100 nA 以上のビーム強度は必要ではなく, 実質上問題はない.

次に図4にpick-up型BPMで周回ビームを観測した様子を示す. ここでは時間幅2 μsでパルス入射した20 keV Xe⁺イオンの例である. 蓄積イオンはその質量と電荷により一定の周期で周回する. この時間情報を使って, pick-up型BPMで得たイオンの周回信号のフーリエ変換を行えば, イオンの質量分析ができる. Xe⁺イオンには124から136まで9つの同位体が存在し, これらが分離して観測された. この場合の質量分解能はΔE/Eは500程度であり, 質量分析という意味ではあまり高くない. しかし, 我々が行う複数のイオン種を同時蓄積, バンチ化して, さらにパルスレーザー照射と同期する場合には大変有用である.

4.2 デバンチングおよびバンチング

イオン蓄積リングでパルスビームを周回させていると, 入射イオンの持つ初期運動量の幅により, 時間が経つに連れバンチビームは拡がる(デバンチング)ので, やがて時間構造が消失してDCビームとなる. pick-up型BPMではイオンビームの誘導電荷を観測するため, バンチビームが拡がっていく様子をはっきりと測定される. この様子を観測した例が図5である. ここでは20 keVのAr⁺イオンを時間幅10 μsで入射しており, 1周するのに25 μs必要である. 時間が経過するに連れて徐々に信号強度が低くなり, 60 ms後にはほとんど平らなDCビームになった. なお, 中性粒子検出器とpick-up型BPMという2種類の検出系は, その特徴を生かして双方を補うことができる. 例えば, 超高真空下では, 残留ガスとの衝突による中性粒子の生成量が小さくなる. そのため中性粒

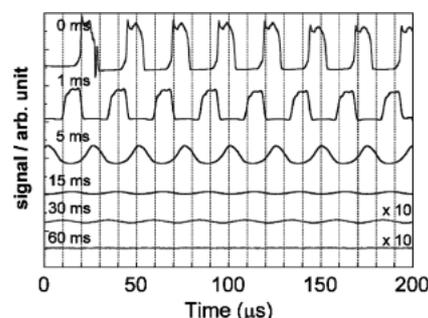


図5 pick-up型BPMによって観測されたAr⁺イオン周回信号. パルス構造が入射後約60 msには消失している.

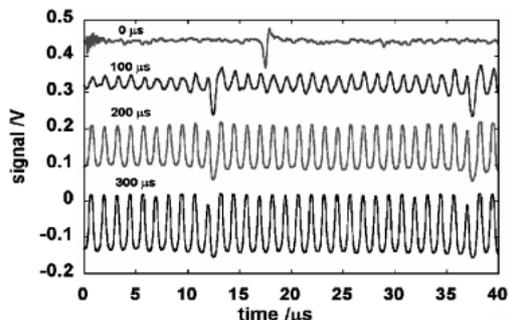


図6 pick-up型BPMによって観測された直流Ar⁺イオンビームを電極に高周波を加えることによりバンチ化した場合の周回信号.

子検出器での観測は困難になるが, pick-up型BPMではビーム自身の誘導電荷を測定するため真空度には依存しない. 一方, 入射後一定時間を経るとデバンチングによってpick-up型BPMではビームを観測できなくなるが, 中性粒子検出器ではこの現象は問題にならない.

反対にリング内の円筒型電極に高周波電場を加える

ことでバンチ化することも可能である。図6はリング1周の長さの Ar^+ ビーム（つまり周回周期 $25\ \mu\text{s}$ の長さ）を幅 $0.6\ \mu\text{s}$ の20個のバンチにした例であり、イオン周回周波数の20倍の周波数の振幅にして $20\ \text{V}$ の高周波電場を与えることによって、約 $200\ \text{ms}$ 後には完全にバンチ化された。

4.3 ベータトロン振動の観測

リング中に蓄積されるイオンは、設計軌道として選ばれた中心軌道のまわりを振動しながら周回する。共鳴条件を満たす高周波電場を与えることで周回ビームが失われる様子（RF ノックアウト）をpick-up型BPMにより観測することで、このベータトロン振動を検出した。実験は Xe^+ イオンを周回させて、BPM電極の水平、垂直方向それぞれに振幅約 $10\ \text{V}$ の高周波を印加した。その結果、水平方向に $52.6\ \text{kHz}$ の高周波を、垂直方向は $11\ \text{kHz}$ の高周波を加えることによりビームが周回しなくなった。これにより、 $\nu_h = 2.37$ 、 $\nu_v = 0.5$ という設計値どおりのチューンが求められた。

5. 準安定分子イオンの蓄積

以上述べたようなビーム蓄積テストを経て、いよいよ本格的なイオン蓄積実験を平成17年より開始した。最初の蓄積の対象としたのは、2価正分子イオンの寿命測定である。液体中では溶媒和効果により安定な2価正分子イオンは数多く存在するが、真空中の孤立分子イオンの場合、サイズの大きな巨大分子イオンを除くと安定に存在するものはごく限られている。その中で代表的なものとして電子衝撃によって生成した CO^{2+} イオンの蓄積を試みた。中性粒子検出器による観測結果を図7に示す。このように寿命成分は少なくとも3種類のものが存在することが判明した。最

も長い寿命成分は残留ガスとの衝突で寿命が決まっているため、本来の寿命はより長いと考えられ、数秒以上安定に2価分子イオンが存在することが確認された。このような長寿命の準安定状態イオンを観測することができるのがイオン蓄積リングの強みである。また複数の寿命成分は電子状態、振動状態によってイオンの解離寿命が異なることに起因している。

6. クラスタイオンの蓄積

さらに、パルスレーザー脱離イオン源によって、クラスタイオンの蓄積を行った。図8は C_{60}^+ 、 C_{70}^+ イオンを同時蓄積した例である。はっきりとpick-up型BPM信号に2種類の周期の信号が観測されている。これに、前述のバンチング法を適用して一方の C_{60}^+ イオンのみをバンチ化した場合が図中の右のものに相当する。同時蓄積イオン種のうち、一方を選択的に取り出せるため、パルスレーザー照射と同期して個別の分光が可能になると期待される。また負クラスタイオンの蓄積も行っており、質量数720の C_{60}^- イオンのみ

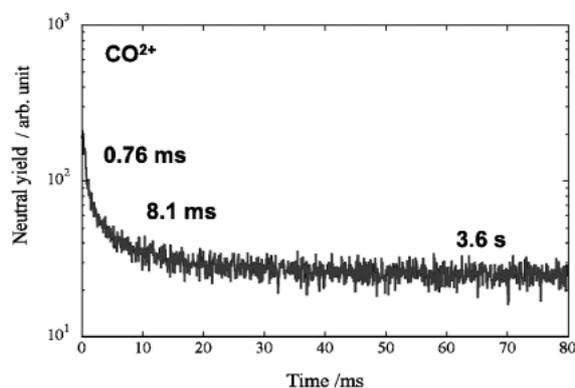


図7 中性粒子検出器によって観測された CO^{2+} イオンの減衰スペクトル。

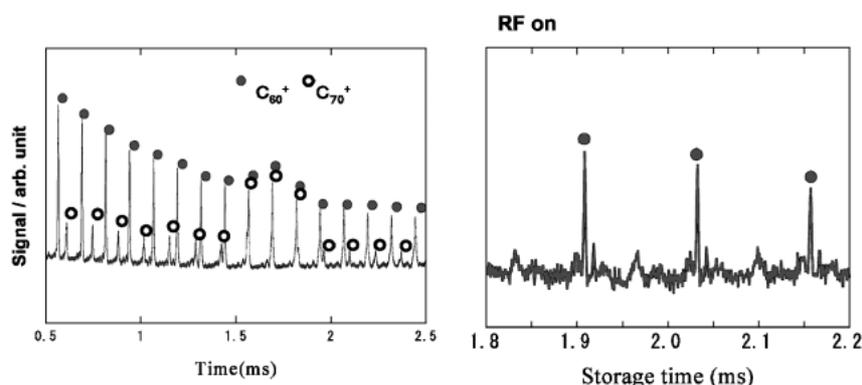


図8 pick-up型BPMによって観測された、 C_{60}^+ と C_{70}^+ イオンの同時蓄積した場合とその後 C_{60}^+ イオンのみを選択的にバンチ化した場合の周回信号。

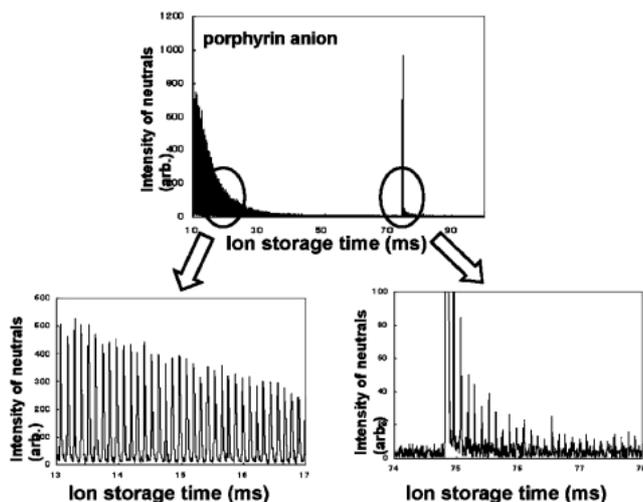


図9 中性粒子検出器によって観測されたポリフィリン負イオンビームの減衰スペクトル. 入射後 74.8 ms 後に 523 nm のパルスレーザーを導入している.

ならず、質量数 615 のポリフィリン負イオンの蓄積にも成功した。ポリフィリンは、種々の金属イオンを取り込む性質があり、ヘモグロビン、クロロフィルなどを仲間を含む生物、医学などの分野で重要な物質であるが、気相でのイオンの電子状態の報告は極めて少ない。図9に中性粒子検出器で観測したビーム寿命を示す。このように入射直後はイオンが高温にあるため自動電子脱離によって中性化するが、その後の長寿命成分は希ガスとの衝突による。Nd:YAG レーザーおよび波長可変 OPO レーザーを導入し、リング直線部においてレーザーマージング実験を開始している。光照射によって負イオンの電子脱離中性化を起こさせるもので、図9のようにレーザー照射時に中性反応生成物が増加することを確認している。またこの場合入射後約 20 ms でバンチ構造が失われるが、レーザー照射によってビームの一部のみが励起されるため、再びバンチ構造が現れることも観測される。このような反応をレーザーの波長を変化させて行くと、多光子過程の中間状態を経由したとき共鳴的に脱離が増大することを利用した REMPED (共鳴多光子電子脱離分光) などの分子振動分光が、真空中に孤立した冷イオンに対して適用可能であり、現在実験が進行中である。

7. まとめと展望

以上のように、首都大静電型イオン蓄積リング TMU-E-ring は順調に開発製作を経て、ようやく本実験開始の段階にこぎつけることができた。また本リングの最大の特徴である冷却化もほぼ設計通りに動作

確認することができた。

今後、計画している様々な実験を順次実施していく予定である。これらの実験を遂行するには複数のイオン源を必要とするため、これらのイオン源を同時進行で開発していく必要がある。最初に開始した実験は、準安定イオンの寿命の測定であるが、これを詳細に研究するため、やはり波長可変 OPO レーザーと合流衝突させ、振動構造を反映したスペクトルの測定へ進みたい。同様にクラスターイオンや生体分子イオンが冷却していく過程をイオン入射時とレーザー打ち込みの時間差を変えることによって、スペクトルを追跡できるので、多原子分子イオンの発生からその安定構造に落ち着くまでのダイナミクスを明らかにしてゆきたいと考えている。そのために、実際に常温下と液体窒素冷却下での比較実験を行う予定である。将来は、交差させるビームとして中性粒子や電子などを導入することにより本格的な原子分子衝突実験へと展開してゆきたい。

最後に、この静電型イオン蓄積リングは他の技術の急速な進歩と連動あるいは競合しているということを指摘しておきたい。レーザー脱離イオン源 (MALDI: matrix assisted laser desorption ion source) や、液滴からイオンを生成するエレクトロスプレーイオン源 (electrospray ion source) の登場によって、初めて大きな質量を持つ生体分子やクラスターイオンを扱うことが可能になった。さらに、競合相手として視野に入るのはイオントラップ技術、とくに高磁場下で RF 高周波を印加し質量分析を行う FT-ICR (Fourier transform ion cyclotron resonance) や、質量分析に特化した多重周回飛行時間型用のリングが挙げられる。静電型イオン蓄積リングとこれら装置との大きな差異は、質量分析を行うだけではなく、他のビームとの交差合流実験が可能であり、その反応生成物を容易に測定できるという点にある。以上のように、イオン蓄積リングは、元来高エネルギー粒子を取り扱う加速器技術に基礎をおいているが、今後質量分析計のような小型高精度装置との融合や競合が展開されると予想される。

謝辞

本研究は、東京都特殊設備購入費、文部科学省科学研究費 (基盤 A, 14204062, 基盤 B, 14340124), および、日本原子力研究所黎明研究による援助を受けて行われた。また、リング本体の設計・製作は、渡辺郁男氏をはじめとする榊東芝のスタッフとの共同作業で行われた。

参考文献

- 1) S. Jinno, T. Takao, Y. Omata, A. Satou, H. Tanuma, T. Azuma, H. Shiromaru, K. Okuno, N. Kobayashi and I. Watanabe: Nucl. Instrum. & Methods A532, 477 (2004).
- 2) S. P. Møller: Nucl. Instrum. & Methods A394, 281 (1997).
- 3) S. Tomita, J. U. Andersen, C. Gottrup, P. Hvelplund and U. V. Pedersen: Phys. Rev. Lett. 87, 073401 (2001).
- 4) J. U. Andersen, C. Gottrup, K. Hansen, P. Hvelplund and M. O. Larsson: Eur. Phys. J. D17, 189 (2001).
- 5) K. Hansen, J. U. Andersen, P. Hvelplund, S. P. Møller, U. V. Pedersen and V. V. Petrunin: Phys. Rev. Lett. 87, 123401 (2001).
- 6) J. U. Andersen, P. Hvelplund, S. B. Nielsen, U. V. Pedersen and S. Tomita: Phys. Rev. Lett. 65, 053202 (2002).
- 7) J. U. Andersen, E. Bonderup and K. Hansen: J. Phys. B35, R1 (2004).
- 8) J. U. Andersen, P. Hvelplund, S. Brondsted, S. Tomita, H. Wahlgreen, S. P. Møller, U. V. Pedersen, J. S. Forster and T. J. D. Sørensen: Rev. Scientific Instruments 73, 1284 (2002)
- 9) S. B. Nielsen, A. Lapierre, J. U. Andersen, U. V. Pedersen, S. Tomita and L. H. Andersen: Phys. Rev. Lett. 87, 228102 (2001).
- 10) L. H. Andersen, O. Heber and D. Zaifman: J. Phys. B, 37, R57 (2004).
- 11) T. Tanabe, K. Chiba, K. Noda and I. Watanabe: Nucl. Instrum. & Methods A482, 595 (2002).
- 12) T. Tanabe, K. Noda and E. Syresin: Nucl. Instrum. & Methods A532, 105 (2004).
- 13) 田辺徹美：日本物理学会誌 48, 966 (2004).
- 14) T. Tanabe, K. Noda, M. Saito, S. Lee, Y. Ito and H. Takagi: Phys. Rev. Lett. 90, 193201 (2003).
- 15) T. Tanabe, K. Noda, M. Saito, E. B. Starikov and M. Tateno: Phys. Rev. Lett. 93, 043201 (2004).
- 16) 田辺徹美：日本物理学会誌 60, 632 (2005).
- 17) www.msi.se 参照.
- 18) www.mpi-hd.mpg.de/ion-storage 参照
- 19) conference.fnal.gov/cool05/ 参照
- 20) www.weizmann.ac.il/conferences/electrostatic/index.html 参照