

極低温静電型イオン蓄積リング RICE を用いた N_2O^+ の輻射冷却の観測 (埼玉大理^a, 立教大理^b, 理研^c) ○伊五澤涼^a・中野祐司^b・久間晋^c・山口貴之^a・東俊行^c

Radiative cooling of N_2O^+ in the cryogenic ion storage ring RICE

(Saitama Univ.^a, Rikkyo Univ.^b, RIKEN^c) Ryo Igosawa^a, Yuji Nakano^b, Susumu Kuma^c,
Takayuki Yamaguchi^a, Toshiyuki Azuma^c

We studied the radiative cooling process of the linear triatomic ion N_2O^+ isolated in a cryogenic ion storage ring operating at 4 K. After the injection, the ion beam was stored up to 1,000 s in the ring. We performed the photodissociation spectroscopy of the stored ion where the neutral fragment traveling out of the ring was detected. Predissociation upon the vibronic transitions $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ ($\Delta v_1 = 2$) offered rotationally resolved spectra with high sensitivity to determine the ion temperature. We found that the vibrational temperature manifested its cooling dynamics in the cryogenic environment in a timescale of seconds. The rotational temperature was well determined even at the storage time of 200 s, which reflected the initial temperature and was consistent with a rate-equation simulation of the radiative cooling. Our storage ring offers a unique experimental tool to explore spectroscopy and dynamics of isolated cold molecular ions.

【序】 分子イオンを孤立環境で長時間捕捉・観測するための手法の一つとしてイオン蓄積リングがある。理化学研究所では、極低温静電型イオン蓄積リング (RICE, RIKEN Cryogenic Electrostatic Ion Storage Ring) [1] を建設し、極低温分子イオンダイナミクスの研究を進めている。このリングでは、温度 4 K の極低温、圧力 10^{-10} Pa の高真空という条件下で、静電場制御によるイオンビームの長時間蓄積が可能である。本研究では、このリングを用いたダイナミクス研究のために分光検出セットアップを構築し、孤立分子イオンの極低温下での輻射冷却過程の探索を目的として N_2O^+ イオンの光解離分光実験と内部温度の追跡を行った。 N_2O^+ イオンは紫外光による前期解離スペクトルで回転分離可能であり、また我々のリングでは生成中性フラグメント検出が容易であることから、本研究に適したサンプルである。

【実験】 N_2O^+ イオンは ECR (電子サイクロトロン共鳴) イオン源へ N_2O ガスを導入し生成した (図 1)。10 kV の電場で加速されたイオンビームは磁場により質量選別され、またパルス化される。イオン入射ラインにおいてビーム条件を最適化後、 N_2O^+ ビームをリングに導入する。光解離実験ではリング直線部にレーザー光を導入し、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する [2]。本実験では、ナノ秒波長可変パルスレーザー (Cobra Stretch, Sirah; dye DCM; 繰り返し 10/100 Hz) の二倍波を用いて、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ ($\Delta v_1 = 2$) 遷移後の前期解離で生成される N 原子を検出した。中性生成物は数 keV の並進速度でダイノードに衝突し、その際放出される二次電子をチャンネル電子増倍管で検出する。波長を変えながら任意時間蓄積後にこの測定を繰り返すことで、輻射冷却過

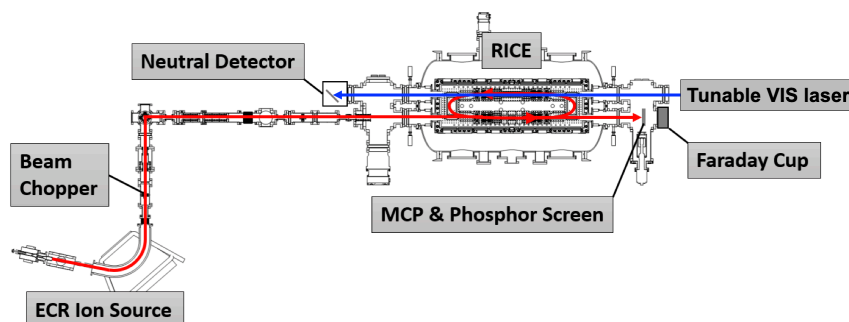


図 1 RICE 光解離実験スキーム。イオンビームとレーザーの軌道を示す。

程を追跡するための光解離スペクトル測定を行った。またマイクロチャンネルプレートにて掃き出しイオンビーム検出を行うことで、同時に蓄積イオン強度の時間変化を測定した。

【結果と考察】 図 2 は N_2O^+ イオンをリングに導入し $8.5\mu s$ 蓄積後に測定した前期解離スペクトルである。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 ($\sim 130\text{ cm}^{-1}$) を示す。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観測された。これは振動遷移における自然放出を通して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る。

図 3(a) は蓄積時間 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 3(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ている。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。

本研究により、極低温静電型イオン蓄積リング RICE を用いた孤立分子イオンダイナミクスにおける新しい分光測定法の可能性が示された。

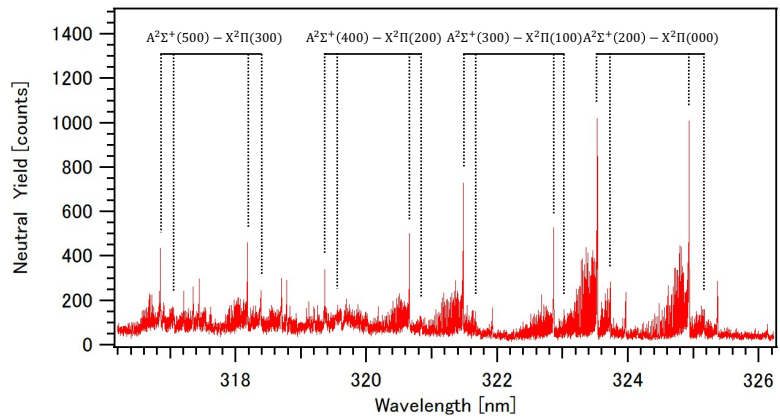


図 2 N_2O^+ イオン $8.5\mu s$ 蓄積後の $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi$ 前期解離スペクトル。対称伸縮モードの $\Delta v_1 = +2$ シークエンスに由来する回転バンド構造が観測された。横軸はドップラーシフトを補正済みである。

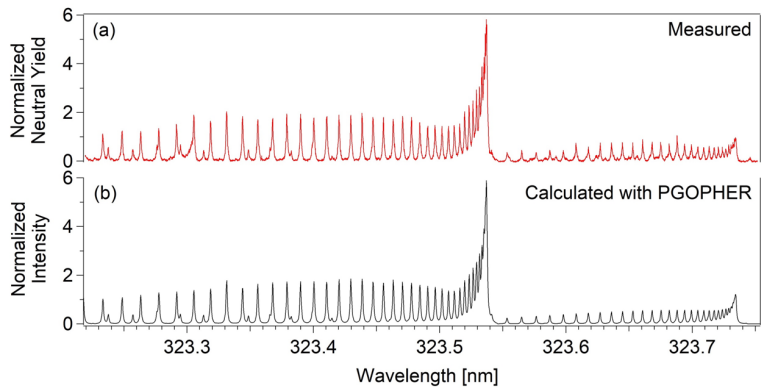


図 3 (a) N_2O^+ イオン 9 ms 蓄積後の $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$ 1_0^2 スペクトル。(b) 回転温度 300 K でのボルツマン分布を仮定したシミュレーション。

【References】

- [1] Y. Nakano *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 33110 (2017).
- [2] Y. Nakano *et al.*, *J. Phys. Soc. Conf. Proc.*, submitted in 2018.