

## 多価イオンの新分光法を実証

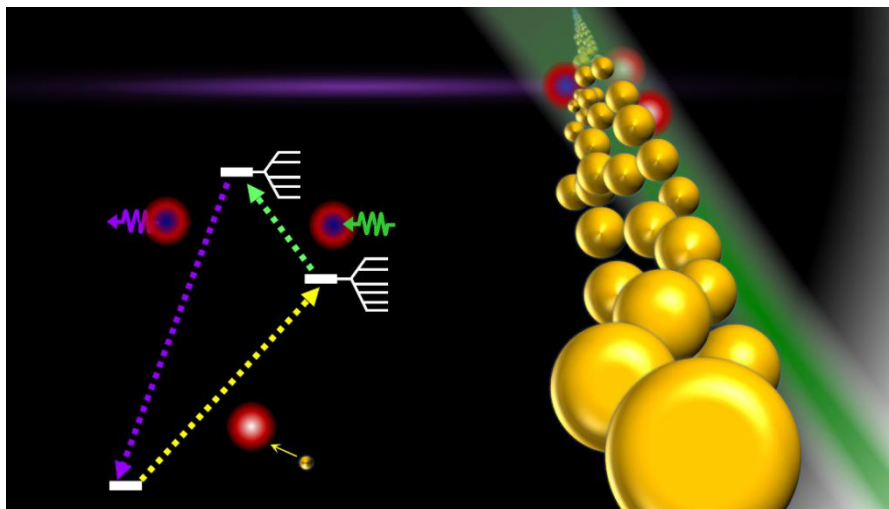
### —多電子重元素多価イオンの超微細構造を観測—

理化学研究所（理研）開拓研究本部東原子分子物理研究室の木村直樹研究員、久間晋専任研究員、東俊行主任研究員、電気通信大学レーザー新世代研究センターのプリティ特別研究員（研究当時、現核融合科学研究所 COE 研究員）、中村信行教授らの共同研究チームは、多価イオン<sup>[1]</sup>の新分光手法「時間分解プラズマアシストレーザー分光<sup>[2]</sup>」を実証し、原子のエネルギー準位<sup>[3]</sup>のごく小さな分裂である超微細構造<sup>[3]</sup>の観測に成功しました。

本研究成果は、原子、原子核、プラズマ<sup>[4]</sup>など幅広い分野において、多価イオン分光を用いた新しい研究展開をもたらすと期待でき、特に次世代の原子時計<sup>[5]</sup>の候補として期待される多価イオン原子時計<sup>[5]</sup>の開発に向けて、貴重な分光測定値を提供します。

今回、共同研究チームは、電子ビームイオントラップ（EBIT）<sup>[4]</sup>という実験室プラズマ<sup>[4]</sup>の中で準安定状態<sup>[6]</sup>の多価イオン（ヨウ素-127 の 7 価イオン、 $^{127}\text{I}^{7+}$ ）を準備し、パルスレーザーの照射によって 10 マイクロ秒（ $\mu\text{s}$ 、 $1\mu\text{s}$  は 100 万分の 1 秒）以下の短い時間だけ生じる、極端紫外光<sup>[7]</sup>を観測しました。また、特殊なプラズマ条件を採用して、別の分裂要因であるゼーマン分裂<sup>[8]</sup>を抑えたことで、レーザー分光スペクトル上に多電子重元素多価イオン<sup>[1]</sup>の超微細構造由来の分裂を観測しました。

本研究は、オンライン科学雑誌『*Communications Physics*』（1 月 24 日付：日本時間 1 月 24 日）に掲載されます。



実証した多価イオンの新分光手法のイメージ

## 背景

原子の持つ離散的なエネルギー準位を調べる分光研究は、ミクロな世界における物理法則を理解するための有効な手段の一つです。多数の電子が剥ぎ取られた高電離状態の原子である「多価イオン」（多価陽イオン）は、そのエネルギー準位構造に相対論的量子力学<sup>[9]</sup>や量子電磁力学<sup>[10]</sup>の効果が色濃く反映されるため、非常に興味深い分光実験対象です。

近年、オーストラリアの理論研究者から、多価イオンのエネルギー準位構造が原子時計への応用に適性を持つことが指摘され<sup>注1)</sup>、電子の数が比較的多い多電子重元素多価イオンに、特に注目が集まっています。電子の数が多くなると複雑性が増し、エネルギー準位構造の予測が困難になりますが、ここ10年、さまざまな多電子重元素多価イオンが分光実験によって幅広く調べられ、理論予測の精度も高まってきました。ただし、エネルギー準位のごく小さな分裂である「超微細構造」の分光観測は、原子時計への応用のためには必要不可欠な要素であるにもかかわらず、ほとんど行われていませんでした。その主な要因には、高分解能の分光技術が求められること、多価イオン実験において苦手とされる弱磁場中での測定が必要であることが挙げられます。

1980年以降、電子ビームイオントラップ（EBIT）をはじめとする多価イオン分光装置の開発が進み、さまざまな分光実験が世界各地で展開されてきました。多価イオン分光実験の標準手法は、プラズマ中の多価イオンの発光を分光器で観測する受動分光法です。これは、多価イオンの生成・保持自体が特殊技術である上に、多くの遷移波長がレーザー分光の適用が困難な極端紫外光から X 線<sup>[7]</sup>の波長領域にあることに起因しています。近年、多価イオン原子時計の提案を受けて、高い分解能を持つレーザー分光手法の開発機運が高まり、複数の実証実験が報告されています。ただし、その数は決して多くありません。分光対象も、電子数が5個程度と極端に少ない高価数の少数電子多価イオンがほとんどで、多電子重元素多価イオンのレーザー分光は手付かずの状態でした。

注1) J. C. Berengut, V. A. Dzuba, and V. V. Flambaum, Enhanced Laboratory Sensitivity to Variation of the Fine-Structure Constant using Highly Charged Ions. *Phys. Rev. Lett.* 105, 120801 (2010).

## 研究手法と成果

共同研究チームは、新分光手法「時間分解プラズマアシストレーザー分光」を実証し、多電子重元素多価イオンの超微細構造を観測しました。この分光手法は、アメリカ国立標準技術研究所の研究者によって2017年に提案された方法であり<sup>注2)</sup>、今回の研究成果は本手法の初めての実証例です。

本手法では、まずEBITを用いて目的の多価イオンを生成します。EBITは、磁場を用いて空間的に圧縮した電子ビームで構成される実験室プラズマです。プラズマ中では、原子と電子が頻繁に衝突しています。その衝突過程を何度も繰り返すことで、逐次的にイオンの電離が進み、多価イオンとなります。また、電子と多価イオンの衝突は、電離だけではなく多価イオンの励起<sup>[6]</sup>にも寄与します。

---

励起された多価イオンは、自然放出による脱励起（輻射）<sup>[6]</sup>過程を経て、基底状態<sup>[6]</sup>か寿命の長い準安定状態となります。この準安定状態の多価イオンにパルスレーザーを照射し、寿命の短い別のエネルギー準位（準安定状態）へと励起させることで、レーザー誘起蛍光（LIF）<sup>[11]</sup>を観測します（図 1a、b）。

EBIT が常時保持できる多価イオンの数は多くても 10 万個程度と少ない上に、プラズマ中ではあらゆる波長の発光が一定の強度で常に生じているため、目的のレーザー誘起蛍光の観測は簡単ではありません。レーザー誘起蛍光の強度を増やすには、適切な多価イオンを実験対象として選定し、そのエネルギー準位構造とプラズマ中の励起および緩和過程を詳細に理解した上で、寿命の長い準安定状態のイオンの数が増えるプラズマ環境に EBIT の運転条件を調整しなければなりません。

今回の実証実験では、ヨウ素-127（陽子数および電子数 53、中性子数 74）の 7 価イオン  $^{127}\text{I}^{7+}$ （電子数 46）を採用し、生成されたイオンのうち 10%以上が準安定状態になる条件で実験を行いました。また、時間分解計測が可能な自作の極端紫外分光器を用い、プラズマ中の発光のうちレーザー誘起蛍光成分のみを分離して検出する実験装置を整えました。その結果、レーザー照射後 10 マイクロ秒（ $\mu\text{s}$ 、 $1\mu\text{s}$  は 100 万分の秒）以下の短い時間に特定の波長（25 ナノメートル [nm、nm は 10 億分の 1 メートル]）で生じる発光信号を感度良く観測することに成功しました（図 1c、d）。

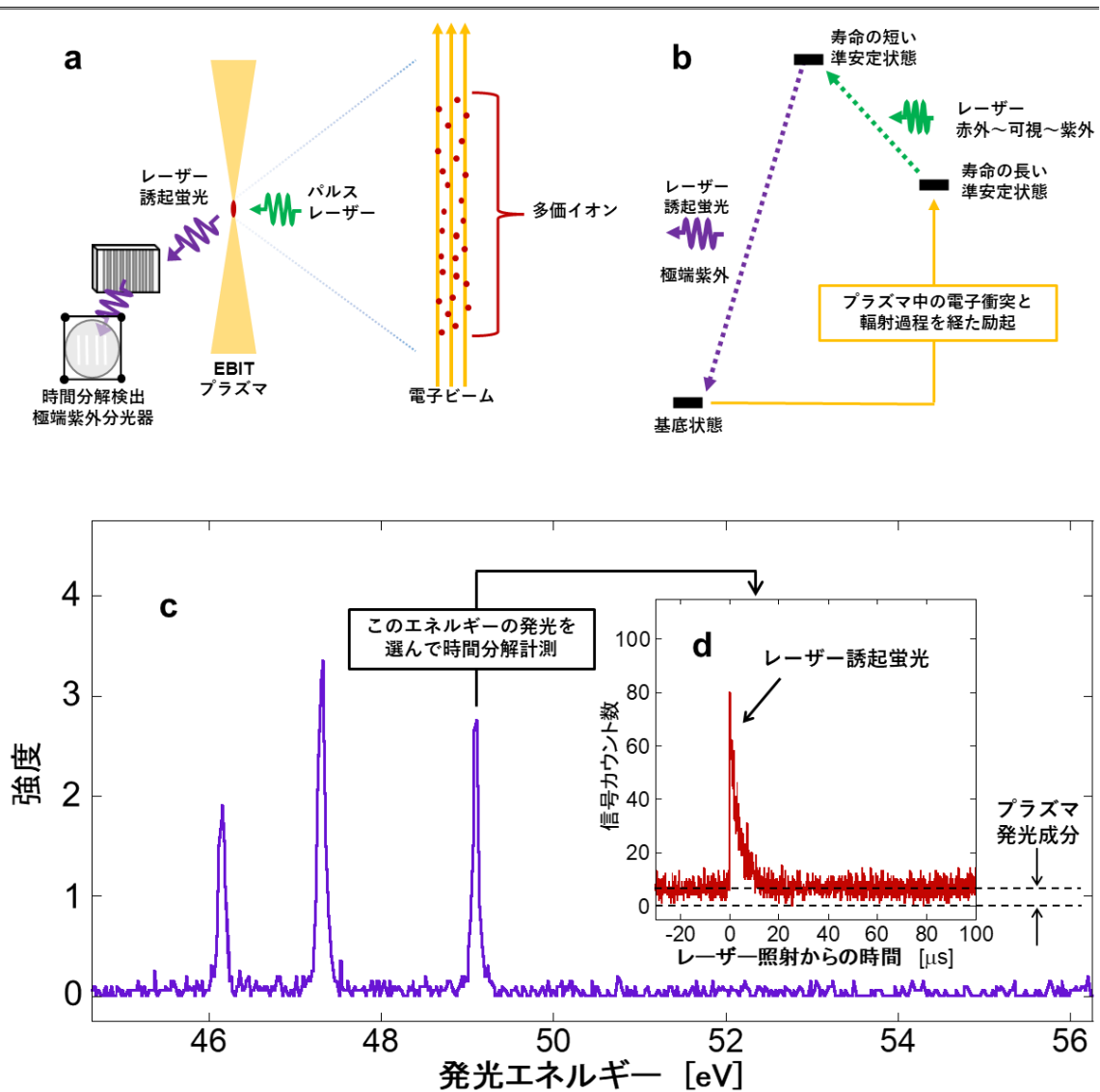


図 1 時間分解プラズマアシストレーザー分光法の概要

- (a) 実験装置略図。
- (b) 本分光手法で観測できるレーザー励起の典型例。
- (c) 今回、実証実験で採用したヨウ素-127 多価イオン  $^{127}\text{I}^{7+}$  のプラズマ中発光の波長スペクトル。
- (d) レーザー誘起蛍光の時分割信号。  $^{127}\text{I}^{7+}$  の 49eV (電子ボルト) の発光は、プラズマ中で常に生じているが、パルスレーザーを照射することで、一時的に発光が強まる。この時間分解スペクトルに現れるレーザー誘起蛍光信号は非常に弱く、共鳴波長のパルスレーザーを繰り返し周波数 100Hz で 1 時間以上照射することで、ようやく検出が可能になる。

今回の実証実験で観測したレーザー励起は、微細構造<sup>[3]</sup>間の遷移です。図 2a に示す通り、レーザー励起の始状態と終状態はそれぞれ異なる超微細構造を持っており、14 種類の遷移が生じます。図 2b には、超微細構造に起因するそれぞれの遷移のエネルギーシフトを横軸 (単位に波数<sup>[12]</sup>を採用) に、遷移ごとの強度 (遷移確率) を縦軸にプロットしたスペクトル形状のシミュレーションを示しています。これは多価イオンのエネルギースペクトルの分裂としては非常に小

さく、一般的な受動分光の分解能では、このような超微細構造を分離して観測することはできません。今回、レーザーの波長を掃引しながら、レーザー誘起蛍光の強度を観測することで、この小さな分裂の観測に挑戦しました。

現実のレーザー分光スペクトル形状には超微細構造に加え、磁場によるゼーマン分裂と呼ばれるエネルギー分裂が反映されます。一般的なEBITを用いた場合、多価イオンは0.5テスラ(T)以上の強い磁場環境下に置かれるため、ゼーマン分裂が超微細構造の特徴をかき消してしまいます(図2c)。そこで、実験条件を最適化して0.03Tで多価イオンを安定的に生成できる条件を見だし、ゼーマン分裂を抑えて実験を行う、世界でも例を見ない低磁場環境のEBIT実験を実現しました(図2c)。

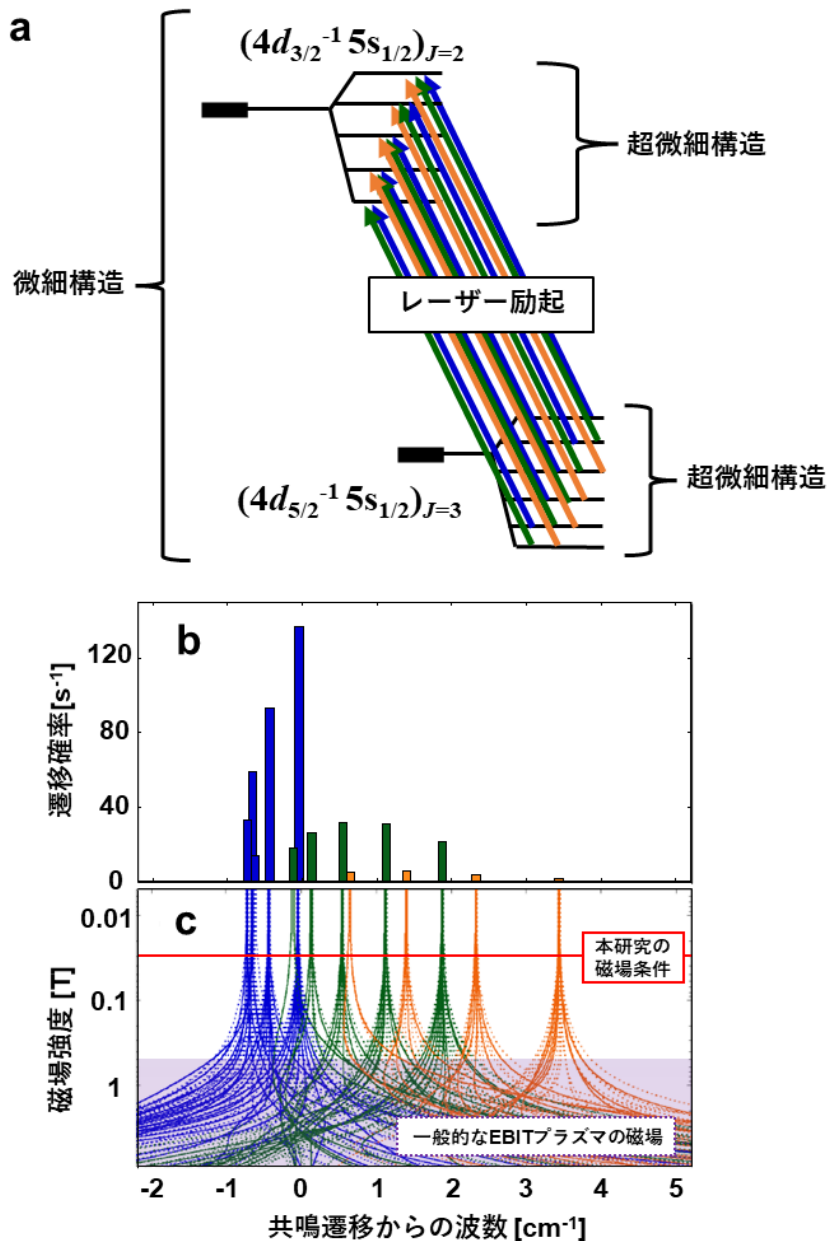


図2 実証実験で扱った遷移の準位構造とスペクトルシミュレーション

- (a) 今回の分光実験に採用したヨウ素多価イオン  $^{127}\text{I}^{7+}$  のレーザー励起遷移（14 種類）と超微細構造。  
 (b) レーザー波数スペクトルにおける超微細構造分裂と遷移強度（遷移確率）の理論シミュレーション。  
 (c) 各レーザー遷移のゼーマン分裂の磁場強度依存性。グラフ下の磁場強度 0.5T 以上の一般的な EBIT プラズマの磁場では、ゼーマン分裂により超微細構造の特徴がかき消される。ピンクの横線で示した 0.03T の低磁場条件により、ゼーマン分裂を回避した。本実証実験で採用した遷移の共鳴エネルギー中心の波数（エネルギー）は  $17633\text{cm}^{-1}$ （波長にして 567nm）であり、隣接する超微細構造準位間のエネルギー差は  $1\text{cm}^{-1}$  程度である。今回用いた分光用パルスレーザーのエネルギー幅は、 $0.03\text{cm}^{-1}$  と 1 桁以上小さい。

この工夫によって、超微細構造の寄与を明瞭に反映した特徴的なスペクトル形状の観測に成功しました（図 3）。また、詳細なスペクトル形状の解析によって、超微細構造の大きさを実験的に決定しました。これは、多電子重元素多価イオンの超微細構造の理論計算精度を評価する初めての分光測定結果です。

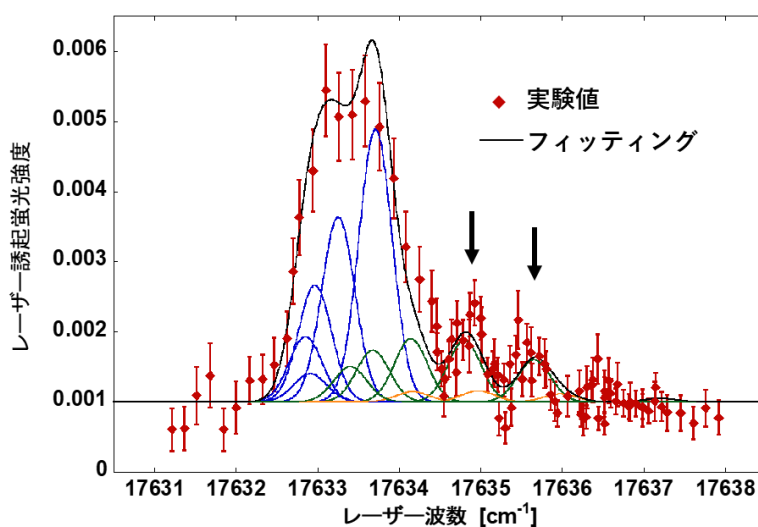


図 3 観測したレーザー分光スペクトルとフィッティング結果

青・緑・オレンジの線は、フィッティング結果から導出した 14 種類の遷移ごとのスペクトル形状。17634 ~ 17636  $\text{cm}^{-1}$  に示した黒矢印の箇所、超微細構造由来の特異な構造が観測されている。それぞれの遷移スペクトルの幅は、イオンの運動エネルギーに起因するドップラー効果の拡がりを反映している。

注 2) Y. Ralchenko, Infrared and visible laser spectroscopy for highly-charged Ni-like ions. *Nucl. Instrum. Methods B* 408, 38 (2017).

## 今後の期待

原子時計への応用を見据えると、超微細構造の大きさを把握することは必要不可欠です。既に、多様な多電子重元素多価イオンの超微細構造が、さまざまな方式の原子構造計算によって理論的に予測されています。しかし、本当にその大きさで超微細構造が分裂しているのかを実験で確かめた例はありませんでした。今回、実験的に決定した多電子重元素多価イオンの超微細構造の大きさは、原子構造計算による超微細構造分裂の理論予測の精度を評価するための良い指標となります。

また、超微細構造の大きさには、原子構造だけでなく原子核の特徴も反映され

ます。今回は、別の方法で原子核構造がよく調べられている安定原子核のヨウ素-127を採用し、原子核構造を評価しましたが、超微細構造の大きさを同位体間で比較すれば、未知の原子核構造を多価イオン分光から研究できる可能性もあります。

加えて、今回観測したスペクトルには、電子密度やイオン温度などプラズマの情報が多く含まれています。従って、本手法には、多価イオンの分光スペクトルをプローブにしてプラズマ状態を調べる手法へ発展できる可能性があり、今後の応用展開が期待できます。

## 論文情報

<タイトル>

Hyperfine-structure-resolved laser spectroscopy of many-electron highly charged ions

<著者名>

Naoki Kimura, Priti, Yasutaka Kono, Pativate Pipatpakorn, Keigo Soutome, Naoki Numadate, Susumu Kuma, Toshiyuki Azuma, Nobuyuki Nakamura

<雑誌>

*Communications Physics*

<DOI>

10.1038/s42005-023-01127-x

## 補足説明

### [1] 多価イオン、多電子重元素多価イオン

多価イオンは、正もしくは負の方向に2価以上帯電した原子・分子の総称。一般的には、陽子数に比べて電子数が2個以上少ない原子イオン（陽イオン）が多価イオンと呼ばれる。多電子重元素多価イオンとは、電子を多く持つ比較的価数が低い重元素多価イオンのこと。その定義は若干あいまいで、電子の数や元素の重さに関して明確な定義はないが、後述の原子時計への応用が期待されている第5～6周期の原子核を持つ5～30価程度の多価イオンを指すことが多い。多電子重元素多価イオンは、中性原子に比べて、電子が原子核の電場を強く感じる上に、電子の多さから原子構造がより複雑であり、電子軌道理論計算の難易度が高い。また、中性原子や一価イオンで用いられる技術が適応できないにもかかわらず、高分解能の分光手法が求められることが多々あり、実験研究としても挑戦的要素が多い。

### [2] 時間分解プラズマアシストレーザー分光

アメリカ国立標準技術研究所の Yuri Ralchenko 博士によって提案された多価イオン分光の新技术。プラズマ中の多価イオンにパルスレーザーを照射する分光手法であり、プラズマ中の電子衝突および輻射過程の助けを借りることで、他の手法では実現が困難な準安定状態間の高分解能レーザー分光を実現する。分光手法名は本共同研究チームが命名した。

### [3] 原子のエネルギー準位、超微細構造、微細構造

---

原子核に束縛された電子は、ミクロな世界の物理法則である量子力学に従い、離散的な軌道を取る。各軌道は異なるエネルギーを持ち、原子が持つ離散的な「エネルギー準位」と対応している。原子分光の分解能を向上させると、小さなエネルギー分裂の存在が明らかとなる。この分裂はその小ささから、「微細構造」および「超微細構造」と呼ばれており、この二つは起源が異なる。微細構造は、電子のスピンと電子の軌道角運動量の相互作用によって生じる。一方、超微細構造の起源は主に原子核スピンと電子の間の磁氣的相互作用である。そのため、超微細構造の分裂の大きさには、原子核の核スピンおよび核磁気モーメントの大きさが反映されている。また、超微細構造の方が微細構造よりも小さく、その実験観測には高い分解能の分光手法が必要となる。

#### [4] プラズマ、電子ビームイオントラップ (EBIT)、実験室プラズマ

「プラズマ」とは固体・液体・気体に次ぐ物質の第4の状態であり、気体を構成する原子および分子が電離し、正イオン（陽イオン）と電子に分かれて運動している状態のこと。上層大気や宇宙空間など自然界の至るところに存在する。実験室で意図的に生成したプラズマを「実験室プラズマ」と呼ぶ。「電子ビームイオントラップ」とは、単一エネルギーの電子ビームを真空中で磁場を用いて収束させ、高密度化した実験室プラズマである。電子密度や磁場強度、電子エネルギーなどを任意に制御可能であり、「よく定義されたプラズマ」とも呼ばれる。電子ビームイオントラップの中に原子を導入すると、電子との衝突が頻繁に起こり、逐次的な電離過程が生じて多価イオンが生成される。EBITはElectron beam ion trapの略。

#### [5] 原子時計、多価イオン原子時計

時間と周波数は逆数の関係にある。そのため、振動子の周波数を精密に測り、その周波数を常に標準とすることで、精密な時計を構築できる。「原子時計」とは、原子のエネルギー準位間の遷移周波数を標準とした時計であり、周波数測定の不確かさが小さいほど、ずれの少ない良い時計となる。現在、1秒の基準となっているのは、中性のセシウム (Cs) 原子のマイクロ波遷移であるが、レーザー技術の発展に伴って、可視光近傍領域の遷移を用いる「光格子時計」や「単一イオン時計」が第2世代の原子時計として提案され、既にセシウム原子時計の精度・確度を凌駕する性能が実証されている。「多価イオン原子時計」は、第2世代に次ぐ、第3世代の原子時計の候補である。第2世代の精度・確度を更新すると期待されているとともに、現代基礎物理学の議論に貢献するさまざまな応用研究が提案されている。

#### [6] 準安定状態、励起、脱励起（輻射）、基底状態

それぞれの原子において、最も低いエネルギーの状態を「基底状態」と呼び、それ以外の状態は「励起状態」と呼ばれる。基底状態は、外界からの摂動がない限り、状態が変化しない安定な状態である。一方、励起状態は状態固有の寿命を持ち、より低いエネルギーの状態へ遷移する。この過程は「脱励起」もしくは「輻射」と呼ばれる。「準安定状態」は基底状態ではないが、寿命が長く別の状態に遷移しにくい状態のこと。また、電子衝突や光照射によって、状態間を遷移することを「励起」という。

#### [7] 極端紫外光、X線

極端紫外光、X線はともに、可視光よりも波長が短い光（電磁波）である。波長領域を定義する明確な規定はないが、極端紫外光は100～10ナノメートル（nm、nmは10億分の1メートル）付近、X線は10nm以下の電磁波を指すことが多い。ちなみに、本実証で観測したレーザー誘起極端紫外光の波長は25nmである。



## [8] ゼーマン分裂

超微細構造の各準位は、磁気副準位と呼ばれる複数の準位を内包している。磁場のない環境下では、これらの準位は同じエネルギーを持つ（縮退している）が、磁場によってその縮退が解け、各磁気副準位は異なるエネルギーを持つ。このエネルギー分裂は発見者のピーター・ゼーマンにちなみ、ゼーマン分裂と呼ばれる。

## [9] 相対論的量子力学

相対論は相対性理論の別称で、アルベルト・アインシュタインが導いた時間・空間・重力などのこの世界の根幹をなす事象に関する理論。重力を扱わず慣性系のみを取り扱う特殊相対性理論と、主に重力について論じた一般相対性理論の二つに分けて呼ばれることもある。量子力学に対して特殊相対性理論を適用した相対論的量子力学は、原子のエネルギー準位を理解する上で必須である。例えば微細構造は、非相対論的な量子力学の基礎方程式である「シュレディンガー方程式」を相対論に拡張した「ディラック方程式」で電子の束縛状態を解くと、自然に導出されるエネルギー分裂である。

## [10] 量子電磁力学

特殊相対性理論と量子力学を取り入れて、電磁波と物質の相互作用を扱う理論。ディラック方程式だけでは説明できない「ラムシフト」と呼ばれるエネルギー準位のずれを説明した。強い電磁場にさらされた系を扱う際、これらの理論と非相対論的量子力学との差が明瞭に現れる。多価イオンは、中性原子や一価イオンに比べて、電子軌道が原子核に近いので、電子が原子核の電場を強く感じ、微細構造やラムシフトが大きくなる。

## [11] レーザー誘起蛍光 (LIF)

レーザー光による励起の後、脱励起に伴って生じる発光。LIF は Laser-induced fluorescence の略。

## [12] 波数

エネルギーの単位で、光の波長の逆数  $\text{cm}^{-1}$  で表される。

## 共同研究チーム

理化学研究所 開拓研究本部 東原子分子物理研究室

研究員	木村直樹	(キムラ・ナオキ)
専任研究員	久間 晋	(クマ・ススム)
主任研究員	東 俊行	(アズマ・トシユキ)

電気通信大学 レーザー新世代研究センター

特別研究員 (研究当時)	プリティ	(Priti)
(現 核融合科学研究所 COE 研究員)		
大学院生 (研究当時)	河野泰隆	(コウノ・ヤスタカ)
大学院生 (研究当時)	ピパットパーコン・パティベート	(Pipatpakorn Pativate)

大学院生	早乙女京吾	(ソウトメ・ケイゴ)
特別研究員 (研究当時)	沼舘直樹	(ヌマダテ・ナオキ)

教授 中村信行 (ナカムラ・ノブユキ)

## 研究支援

本研究は、日本学術振興会（JSPS）科学研究費助成事業若手研究「無磁場環境下の孤立多価イオンを用いた超微細構造相互作用の実験的検証（研究代表者：木村直樹）」「冷却分子イオンビームを用いた分子イオン時計遷移波長の実験的導出（研究代表者：木村直樹）」、同基盤研究（B）「多価イオンにおける超長寿命準安定状態のポピュレーションキネティクス（研究代表者：中村信行）」、および RIKEN Pioneering Project による助成を受けて行われました。

## 発表者・機関窓口

<発表者> ※研究内容については発表者にお問い合わせください。

理化学研究所 開拓研究本部 東原子分子物理研究室

研究員	木村直樹（キムラ・ナオキ）
専任研究員	久間 晋（クマ・ススム）
主任研究員	東 俊行（アズマ・トシユキ）

電気通信大学 レーザー新世代研究センター

特別研究員（研究当時） プリティ（Priti）

（現 核融合科学研究所 COE 研究員）

教授 中村信行（ナカムラ・ノブユキ）



木村直樹



久間 晋



東 俊行



Priti



中村信行

---

<機関窓口>

理化学研究所 広報室 報道担当

Tel: 050-3495-0247

Email: ex-press [at] ml.riken.jp

電気通信大学 総務企画課 広報係

Tel: 042-443-5019

Email: kouhou-k [at] office.uec.ac.jp

※上記の[at]は@に置き換えてください。

---