# 原子衝突研究協会誌 2008年第5巻第4号

# **Journal of Atomic Collision Research**



The Society for ATOMIC COLLISION RESEARCH

原子衝突研究協会 2008年7月15日発行 http://www.atomiccollision.jp/

# しようとつ 第5巻 第4号

目 次

イオントラップと光共振器を利用した超高感度イオン分光法の開発 (寺嵜 亨,間嶋拓也,近藤 保)	3
第35回総会開催のお知らせ (庶務)	11
原子衝突研究協会第33回研究会のお知らせ (行事委員会)	11
国際会議発表奨励事業に関するお知らせ (庶務)	12
「しょうとつ」原稿募集 (編集委員会)	13
今月のユーザー名とパスワード	13

# イオントラップと光共振器を利用した超高感度イオン分光法の開発

寺嵜 亨

豊田工業大学 terasaki@clusterlab.jp 間嶋拓也 (株)コンポン研究所(現在:首都大学東京) majima@phys.metro-u.ac.jp 近藤 保 豊田工業大学 kondow@clusterlab.jp

平成20年6月15日原稿受付

### 1. はじめに

電場・磁場で運動制御されたイオンビーム実験 で、様々な物理・化学が展開されている.加速・減 速が容易なことから幅広いエネルギー領域で衝 突現象や反応過程が探究されており、質量分析 法が威力を発揮して、反応物中の同位体やクラス ターサイズの選別から生成イオン種の同定までを 行うことができる.検出感度が極めて高いことも特 長であり、2次電子増倍効果を利用した検出器で 単一のイオンを検出することもできる.

一方で、ビーム中のイオン密度は空間電荷で制限され、極めて希薄な試料であることが制約となって、光やマイクロ波で検知する分光実験は一般に困難である。例えば、光吸収分光では光の減衰を直接的に捉えることは難しく、従来、レーザー誘起蛍光(LIF)や(分子やクラスターでは)光解離を観測する手段がとられてきた。ところが、これら間接的な手法では対象のイオン種が必ずしも発光や解離に至らない場合が問題となり、光の減衰を直接検出する感度の高い実験手段の開発が課題となっている。

この困難を克服する手段として, RF イオンガイド [1-4] を利用した線形イオントラップ [5] に標的 イオンを大量蓄積する手法が考えられる.限られ た空間にイオンを蓄積することにより,比較的高 密度(10<sup>7</sup>~10<sup>8</sup> 個/cm<sup>3</sup>)の試料が得られる.さらに, 減速用の緩衝ガスとの衝突を通してイオンの温度 を制御できること,トラップをソレノイド磁石中に設 置して外部磁場を制御できることなども,イオンビ ームよりもむしろイオントラップを用いる利点である. これを超高感度の分光手段と組み合わせて精密 な分光実験を行うことができる [6,7].

我々は、これらイオントラップに蓄積したイオン 種を共振器に閉じ込めた光でプローブする,独自 の超高感度イオン分光法を開発した [8]. その特 長は, 共振器に閉じ込められた光の寿命を計測し て,光吸収を極めて高い感度で検知できることで ある. (気相分子の分光法として開発されたこの測 定手法はキャビティ・リングダウン法 [9-12] として 知られるが,我々はこれを,気相試料ばかりでなく 基板状の固体試料への適用, さらに光吸収ばか りでなく偏光回転の高精度測定にも拡張し,これ らを総称して「フォトントラップ法」と呼ぶ [13-16].)以下で解説する我々の実験装置は、 室温から10K以下へのイオン冷却機能と、最大5 T の磁場で磁気光学効果(ゼーマン分裂・ファラ デー回転)を測定する機能とを備えており、これら は、プラズマ中のイオンを対象としてきた従来のイ オン吸収分光法 [17-19] では困難だった特筆 すべき利点である.

以下,イオントラップに捕捉したマンガンイオン (Mn<sup>+</sup>)の紫外吸収スペクトルと磁場中で測定した ゼーマン分裂・ファラデー偏光回転 [8] を具体



フォトントラップ共振器

図 1. フォトントラップ法による捕捉イオン種の光吸収・磁気光学効果測定とスピン偏極:実験装置図. IG: イオンガイド; QD: 四重極偏向器;QM: 四重極質量フィルター;VD: 鉛直偏向器;GC: ガスセル;ID: イオン検出板.

的な実験例として取り上げ,装置開発の詳細や未 解決の問題点を交えて解説する.さらに,実験を 進める中で偶然に見出したのだが,共振器を往 復する円偏光パルスが誘起する光ポンピング過 程を利用して,捕捉した Mn<sup>+</sup>をスピン偏極する手 法を紹介する [20]. 最後に,トラップ内部のイオ ン分布に関する知見と,そもそもの研究動機であ るサイズ選別クラスターイオンの分光実験につい て,最新の実験結果と今後の展望を述べる.

### 2. 実験装置 [8]

実験装置を図1に、その外観写真を図2に示す. マグネトロンスパッター型イオン源[21,22]で生 成したイオン種を八極子イオンガイド(IG1)で低 速飛行させ、四重極偏向器(QD1)で正イオンだ けを取り出して測定領域へ導く.四重極質量フィ ルター(QM1)で質量数を選別後、さらにイオンガ イド(IG3,4)、四重極偏向器(QD2)でイオンを運 び、線形イオントラップとして動作する長さ40 cm の八極子イオンガイド(IG5)に入射する.イオンは ガスセル(GC)内のHeガスとの衝突で減速され、 ポテンシャル障壁を形成する入口、出口電極(L<sub>in</sub>、 L<sub>out</sub>)の間に蓄積される.ガスセルの壁面は液体 へリウムを導入して10K以下まで冷却が可能であ

り、さらにこの輻射シールドのために円筒状の液 体窒素セルが室温の真空槽壁面との間に挿入さ れている. つまり, イオントラップ領域は, イオンガ イド(内径 11 mm), ガスセル(液体ヘリウム導入 可),液体窒素セルの3重構造になっており、これ らが内径 84 mm, 全長約1mの筒状真空槽に挿 入されている. このイオントラップ真空槽はさらにソ レノイド型超伝導磁石(長さ 80 cm, ボア径 100 mm, 中心部磁場 <5 T)の中に設置されており, 中心のイオントラップ部(長さ 40 cm)の磁場均一 度は 1%以内(設計値)である.トラップ出口電極 (Lout)の電位を下げると蓄積されているイオンを引 き出すことができ, IG6, QD3 で導かれてイオン検 出用電極板(ID1)に到達するイオン電流を測定 する.このパルス状のイオン電流の積分値から蓄 積イオン数を求めることができる. 典型的な蓄積イ オン数は約 10<sup>9</sup> 個(密度に換算すると約 10<sup>7</sup> 個



図2.実験装置の外観写真.

/cm<sup>3</sup>)であり、ほぼ空間電荷飽和値に相当する量 である.なお、トラップ中で解離や酸化などの反応 が起きる可能性があるが、これらは第2の四重極 質量フィルター(QM2)で質量分析して同定した. また、磁場を印加した際にはQD2、QD3付近にお いてイオンの軌道が鉛直方向に曲がるため、偏向 器(VD1、VD2)で電場を印加して軌道のずれを 補償した.

一方,光学測定では、イオントラップを挟むよう に2枚の高反射ミラーを真空槽内に配置し,長さ d = 1.6 m の共振器を構成した. 波長可変パルス レーザー光(MOPO-HF + FDO, Spectra Physics 社:パルス幅 5 ns, 線幅約 0.1 cm<sup>-1</sup>, 繰り返し 10 Hz)を共振器に入射すると出力光は指数関数的 な尾を引く波形となり、この信号光を光電子増倍 管で受光した.光吸収測定では信号の減衰時定 数(光閉じ込め寿命)を計測し、イオンの有および 無の条件で得た時定数r, toから, 1周回毎の吸光 度  $A = (2d/c)(\tau^{-1} - \tau_0^{-1})$ を求めた [d: 共振器長, c: 光速,  $\tau_0 = (d/c)/(1 - R)$ , R: ミラーの反射率]. 偏 光回転測定では信号光の直交する偏光成分を2 台の光電子増倍管で受光し, それらの差の時間 波形を計測した [23]. この差信号の波形 sin{20(t)}(θ(t)は時刻 t の偏光回転角)から1周回 毎の偏光回転角を算出した. 光ポンピング実験で は円偏光パルスを入射し,スピン偏極の結果生じ る占有数の偏りを吸収スペクトルの形状と強度か ら判定した.

なお、イオンガイドを駆動するRF電源はScott L. Andersonらの設計 [24] を参考に製作した.四重 極質量フィルターは Extrel CMS 社製, 超伝導磁 石はJASTEC 社製を使用した.真空槽やイオン源、 イオン光学系の真空部品はすべて独自に設計し、 バキュームプロダクツ(株)、アドキャップバキュー ムテクノロジー(株)、(株)トヤマの3社に加工を依 頼した.

## 3. マンガン原子イオンの吸収分光・磁気光学 分光 [8]

まず,分子やクラスターに比べて強い吸収線を 持つ単原子イオン,とりわけ我々のレーザーの波 長可変範囲に吸収をもつマンガンイオン( $Mn^+$ )を 試料とした.基底状態の $Mn^+(^7S_3)$ には、260 nm 近傍に励起状態の微細構造に伴う3本のスピン許 容遷移( $^7P_{2,3,4} \leftarrow ^7S_3$ )が知られている [25–27]. この紫外域では光学材料自身の吸収のために高 い反射率のコーティングが難しいが、製造会社 (日本航空電子工業(株))と協力して *R*=99.98% を得た.その結果、従来  $Mn^+$ の分光は放電発光 に限られていたが、本実験で初めてこれらの遷移 を光吸収で捉え、さらに磁場下の実験で磁気光 学スペクトルの測定を実現した.

図 3 に<sup>7</sup>P<sub>J</sub>  $\leftarrow$  <sup>7</sup>S<sub>3</sub> (*J* = 2, 3, 4) 遷移の測定結果 (黒丸)を示す. 図 3(a)のように, Mn 核スピン(*I* = 5/2)によって分裂した吸収線の超微細構造を捉 えた. これらは磁場 *B* に比例してゼーマン分裂を 起こし, *B* = 3 T で図 3(b)の吸収スペクトルが得ら れた. 同時に測定されたファラデー回転のスペク トルが図 3(c)であり, 1周回あたり数µrad.程度の 微小な偏光回転を捉えることができた.

これらのスペクトルを次のように解析した. 図 3 (a)の無磁場下の吸収スペクトルは,発光実験で 報告されている超微細構造定数を仮定して, J= 2,3,4への遷移についてそれぞれ14,16,15本の 許容遷移の総和で再現された. 図中, 縦棒は吸 収線の理論値(長さは強度に比例),実線がそれ らに装置関数の線形を与えて合算したスペクトル の計算値である.図 3(b)のゼーマン分裂の解析 では、量子数 F の準位間の相互作用を考慮して 磁場下の固有状態を求め,波動関数から各々の 遷移強度を計算した [28]. その結果, Δm<sub>1</sub> = +1, -1 によるそれぞれ 5, 6, 7本(for J = 2, 3, 4)の吸 収線が核スピン m」でさらに 6 本に分裂し、これら 60, 72, 84本(for J=2, 3, 4)の吸収線の総和がス ペクトルの構造を見事に再現した. 図 3(c)のファ ラデー回転では、ゼーマン分裂して生じた各吸収 線に線幅の装置関数を考慮した分散関数形を割 り当て, 左右円偏光成分の屈折率差として描いた スペクトルが実験結果を良く再現した.

このように, 測定された Mn<sup>+</sup>の光吸収, ゼーマン



図 3. Mn<sup>+</sup>: <sup>7</sup>P<sub>2,3,4</sub> ← <sup>7</sup>S<sub>3</sub> 遷移のスペクトル. (a) 光吸収スペクトルの超微細構造 (B = 0 T), (b) ゼーマン分裂 (3 T), (c) ファラデー回転 (3 T). 黒丸:実験データ, 縦棒:吸収線の理論値(長さは強度を示す), 実線:理論計算によるスペクトル.

分裂, ファラデー回転のスペクトルはいずれも量 子論に基づく解析で見事に説明され, 実験装置 の優れた性能と測定データの信頼性が確認でき た.信号の雑音レベルから見積もった測定感度は 約1 ppm であったが, これは共振器ミラーの反射 率に大きく依存する.因みに, 初期の実験で R =99.2%のミラーで行った測定では雑音レベルが 70 ppm に達し, スペクトルの構造の議論は困難であ った.逆に, 良質の光学材料が入手可能な可視 域であれば, さらに高い感度が期待できる.

唯一うまく説明のつかない点は、吸収線の形状 である.具体的には、図3(a)のように、得られた吸 収線はいずれも1 cm<sup>-1</sup> に及ぶ大きな裾を伴って いる.これを再現するために、上の解析では装置 関数の線形を線幅 0.13、1.3 cm<sup>-1</sup>(強度比1: 0.15)の2つのガウス型関数の和と考えた.この線 形で、ゼーマン分裂、ファラデー回転を含む、す べてのスペクトル測定結果をうまく再現することが できたが、このような線形が現れる理由は明らか ではない.恐らくトラップ内部のイオンの運動と関 係するものと考えられるが、今後さらに詳細な実 験、解析が必要である.

# 4. 捕捉したマンガン原子イオンのスピン偏 極 [20]

前節では直線偏光したレーザー光で測定を行 ったが,円偏光を用いた実験で光ポンピングが起 きることを新たに見出した. 共振器に入射した円 偏光パルスはトラップされた Mn<sup>+</sup>を励起し,角運 動量を受け渡す( $\Delta m_{\rm F}$  = +1). 出力側ミラーで反 射された光も励起に寄与するが,反射の際に光 子のヘリシティも反転し、イオンは逆向きに進むこ の光からも同じ角運動量を得る. 励起されたイオ ンは約4 ns の寿命で発光し, 基底状態で再び別 の光子を吸収する. 共振器内のイオンは, 光の閉 じ込め寿命(数十µs)の間,この吸収・発光サイク ルを繰り返す.吸収過程では常に一定の角運動 量を獲得するのに対して, 左右円偏光が等確率 の発光過程では角運動量(の平均値)は変化しな い.したがって、イオン個々の角運動量は徐々に 増加し、数十回のサイクルの後にすべてのイオン が最大の角運動量状態(m<sub>F</sub> = +F)に到達する(光



図4. 円偏光入射によるMn<sup>+</sup>のスピン偏極. (a) Mn<sup>+</sup>: <sup>7</sup>P<sub>4</sub>
← <sup>7</sup>S<sub>3</sub> 遷移の準位図. (b) Mn<sup>+</sup>基底状態(<sup>7</sup>S<sub>3</sub>)の
m<sub>F</sub> = +11/2 準位へのスピン偏極を示す信号(共振器に入射する直前のパルスエネルギー:200 µJ).
(c) (b)との比較信号(同:2 µJ).

ポンピング). こうして核スピンを含めたスピン偏極 が達成される.

図 4(a)のダイアグラムに示した  ${}^{7}P_{4} \leftarrow {}^{7}S_{3}$ 吸収 遷移について行った実験結果が図 4(b,c)である. 弱いレーザー強度(図 4(c))では,直線偏光で測 定した図 3(a)と同様のスペクトルであり,スピン偏 極は認められなかった. 強度を 100 倍に強めた図 4(b)では,  $F' = 13/2 \leftarrow F = 11/2$  遷移の吸収強 度が約 4.5 倍に増大した一方で,他の遷移は弱ま った.

これらの結果は次のように解釈できる.後者のレ ーザー強度は(13 ns)<sup>-1</sup>の吸収頻度に相当し,共 振器内の光と相互作用する  $Mn^+$ イオンは吸収・発 光を何度も繰り返す.この間に,まず  $F \le 9/2$ の準 位の占有数が F = 11/2 へ移行する.続いて, F =11/2のイオン種は F' = 13/2準位との間の遷移を 繰り返し,図 5(a)のように  $m_F$ の増加が進む.最終



図 5. 共振器を利用したパルスレーザー光ポンピング.
(a) Mn<sup>+</sup>: F' = 13/2 ←F = 11/2 吸収遷移に関わる 磁気副準位図. スピン偏極に伴って吸収強度が増 大する.
(b) スピン偏極状態の模式図.

的に基底状態の $m_{\rm F}$  = +11/2 磁気副準位だけが占 有され,図 5(b)に模式的に示すようなスピン偏極 状態に至るのである.この際,図 5(a)に示したよう に $m_{\rm F}$  値に依存して吸収強度が変化するため,吸 収強度の増加量からスピン偏極度を見積もること ができる.その結果,トラップされた 10<sup>8</sup> 個の  ${\rm Mn}^+$ の 50%以上が $m_{\rm F}$  = +11/2 を占有したと結論した.

さて,本手法は次の3点を特徴とする:(1)吸収・ 発光を十分に繰り返すには数百 ns から数us の時 間を要するため,通常のナノ秒パルス光では励起 持続時間が不十分である. そのため, 従来, 光ポ ンピングには連続光源が不可欠とされてきた.とこ ろが,ここではパルス光の時間幅を共振器で引き 伸ばして光ポンピングを実現した("cavity-assisted optical pumping"). レーザーの連続発振が困難 な紫外域など、広い波長範囲で光ポンピングが可 能になったことを強調したい. (パルスレーザーで スピン偏極を誘起する別のアプローチについて, 光ポンピングを用いない手法が中嶋隆氏によって 解説されている [29].)(2) 共振器の光閉じ込め 寿命が25 µsにも及ぶため、初めの1 µs程度の間 に光ポンピングを完了させ,引き続く時間領域で スピン偏極状態の吸収分光を行った.その結果,

スピン偏極後の各準位の占有数をプローブし,ス ピン偏極度を定量的に評価することができた.さら に,(3)イオントラップを用いた利点として,引き出 したイオンをスピン偏極ビームとして利用する応用 が期待される.

### 5. クラスター研究への展開

さて、ここまで比較的強い吸収(断面積~10<sup>-13</sup> cm<sup>2</sup>)を示す単原子イオンを対象としてきたが、測 定感度から見積もった検出可能な吸収断面積は 10<sup>-15</sup>~10<sup>-16</sup> cm<sup>2</sup>であり、これは種々の分子やクラ スターの電子遷移の吸収分光が可能な性能であ る. 我々はとりわけ質量選別されたクラスターイオ ンへの応用を目指している. 第1節でも述べたよう に、従来、クラスターの光吸収分光は解離や発光 を観測する間接的な手段に頼らざるを得なかった が、サイズの増加とともに解離や発光の収率が大 きく低下することが問題となってきた. さらにはス ペクトル分解能の向上の点からも、光の減衰を 「直接」に測定する意義は大きい.

これまでに,銀クラスター 9量体イオン(Ago<sup>+</sup>)に ついて 310 nm 付近の波長域で実験を行った [30]. 過去の光解離実験 [31] から表面プラズモ ン共鳴に由来すると考えられている強い吸収ピー ク(中心波長 308 nm における吸収断面積が約 8×10<sup>-16</sup> cm<sup>2</sup>)が知られており,この直接測定を試 みた.まず,イオンがトラップの中で均一に分布し ていると想定し,イオンの平均密度から見積もった 光吸収量を期待して実験を進めた.しかしながら, トラップの中心部をプローブした初期の実験では, この期待値を一桁程度も下回る結果となり,吸収 信号は雑音レベル程度の強度にとどまった.

そこで,トラップ内部のイオン分布の均一性に疑 間を持ち,密度分布を実測して調べたところ,図6 のようなリング状の分布を突き止めた.具体的に は,光を吸収すると確実に解離する Ag2<sup>+</sup>をトラッ プし,近紫外域の解離レーザー光を共振器を用 いずに直接照射した.その際,レーザーのビーム 径をトラップの内径(11 mm)よりも十分に細い 2



図 6. Ag2<sup>+</sup>の光解離で測定したイオントラップ内部のイオン 密度分布(イオン数:2×10<sup>9</sup>個).

mm に調整し、レーザーの照射位置を走査して解離イオン強度を測定した. 解離イオン強度がイオン密度に比例することから、イオンの分布を実測することができる. その結果、蓄積イオン数が少ない場合には中心付近に分布するが、蓄積量が増すと、図6のように、次第に周縁部のイオン密度が増加することが明らかになった.

このようなイオントラップの特性を考慮して,トラッ プの中心ではなくイオン密度が最大の領域を光 学軸とするように共振器を配置し直して吸収スペ クトルの直接測定に再挑戦した結果,図7のスペ クトルを得ることができた.測定波長範囲がミラー の反射率が99.95%以上の狭い領域に制限され ているため,スペクトルの全貌を観測することはま だできていないが,光解離に依らず,光の減衰を 直接測定してサイズ選別されたクラスターの光吸 収を捉えた初めての例であることを強調したい.こ のスペクトルは前述した表面プラズモン共鳴と考 えられている吸収ピークとは明らかに合致せず,



今後その解釈を進めて行く.実験は現在さらに進展し,温度依存性やサイズ依存性の測定結果が得られ始めている.

#### 6. おわりに

以上,イオントラップに捕捉したイオン種を共振 器に閉じ込めた光で超高感度測定する新しい分 光法について,実験装置の開発と光吸収・磁気 光学効果の測定法,スピン偏極法を述べた.極め て大きな吸収断面積を持つ原子ばかりでなく,分 子やクラスターの電子遷移にも適用できることを 示し,実験条件の制御性に優れた新しい原理の イオン分光法が確立されたと言えよう. 今後の展 開の一つとして, 我々は, 磁性クラスターの磁気 共鳴分光など,従来困難と考えられてきた実験の 実現を目指している. 例えば, 反強磁性体である 固体とは対照的に、局在スピンが強磁性結合する と考えられているマンガンクラスター  $(Mn_N^+; N = 2, N = 2)$ 3) [32] や酸化クロムクラスター(Cr<sub>2</sub>O<sub>N</sub>; N = 1-3) [33] など, 特異なクラスター磁性の発現機 構を磁場下の精密分光で解明したいと考えてい る [34,35].

イオン源やイオン光学系の設計・製作について 多くの助言を頂いた安松久登,市橋正彦両准教 授に,この場を借りて感謝いたします.本研究は (株)コンポン研究所の研究プロジェクトの一環と して行われています.

#### 参考文献

- [1] E. Teloy and D. Gerlich, Chem. Phys. 4 (1974) 417.
- [2] K. Okuno, J. Phys. Soc. Jpn. 55 (1986) 1504.
- [3] 奥野和彦, 金子洋三郎, 質量分析 34 (1986) 351.
- [4] 奥野和彦, 原子衝突研究協会誌「しょうとつ」 4(2007)11.
- [5] D. Gerlich, Adv. Chem. Phys. 82 (1992) 1.

- [6] K. R. Asmis, M. Brümmer, C. Kaposta, G. Santambrogio, G. von Helden, G. Meijer, K. Rademann and L. Wöste, Phys. Chem. Chem. Phys. 4 (2002) 1101.
- [7] O. V. Boyarkin, S. R. Mercier, A. Kamariotis and T. R. Rizzo, J. Am. Chem. Soc. 128 (2006) 2816.
- [8] A. Terasaki, T. Majima and T. Kondow, J. Chem. Phys. (Communication) 127 (2007) 231101.
- [9] A. O'Keefe and D. A. G. Deacon, Rev. Sci. Instrum. 59 (1988) 2544.
- [10] J. J. Scherer, J. B. Paul, A. O'Keefe and R. J. Saykally, Chem. Rev. 97 (1997) 25.
- [11] G. Berden, R. Peeters and G. Meijer, Int. Rev. Phys. Chem. **19** (2000) 565.
- [12] B. A. Paldus and A. A. Kachanov, Can. J. Phys. 83 (2005) 975.
- [13] A. Terasaki, T. Kondow and K. Egashira, J. Opt. Soc. Am. B 22 (2005) 675.
- [14] 寺嵜亨, 江頭和宏, 近藤保, 分光研究 56 (2007) 62.
- [15] K. Egashira, A. Terasaki and T. Kondow, J. Chem. Phys. (Communication) **126** (2007) 221102.
- [16] 寺嵜亨, 間嶋拓也, 江頭和宏, 近藤保, 日本物理学会誌, 印刷中.
- [17] C. S. Gudeman, M. H. Begemann, J. Pfaff and R. J. Saykally, Phys. Rev. Lett. **50** (1983) 727.
- [18] S. K. Stephenson and R. J. Saykally, Chem. Rev. (Washington, D. C.) **105** (2005) 3220.
- [19] M. Kotterer, J. Conceicao and J. P. Maier, Chem. Phys. Lett. 259 (1996) 233.
- [20] T. Majima, A. Terasaki and T. Kondow, Phys. Rev. A 77 (2008) 033417.
- [21] H. Haberland, M. Mall, M. Moseler, Y. Qiang, T. Reiners and Y. Thurner, J. Vac. Sci. Technol. A 12 (1994) 2925.
- [22] H. Yasumatsu, T. Hayakawa, S. Koizumi and T. Kondow, J. Chem. Phys. **123** (2005) 124709.

- [23] R. Engeln, G. Berden, E. van den Berg and G. Meijer, J. Chem Phys. **107** (1997) 4458.
- [24] R. M. Jones and S. L. Anderson, Rev. Sci. Instrum. 71 (2000) 4335; http://www.chem. utah.edu/faculty/anderson/rfstuff.html
- [25] R. Kling and U. Griesmann, Astrophys. J. 531 (2000) 1173.
- [26] R. Kling, R. Schnabel and U. Griesmann, Astrophys. J. Suppl. Ser. 134 (2001) 173.
- [27] R. J. Blackwell-Whitehead, A. Toner, A. Hibbert, J. Webb and S. Ivarsson, Mon. Not. R. Astron. Soc. 364 (2005) 705.
- [28] P. Tremblay, A. Michaud, M. Levesque, S. Thériault, M. Breton, J. Beaubien and N. Cyr, Phys. Rev. A 42 (1990) 2766.
- [29] 中嶋隆, 日本物理学会誌 62 (2007) 230.
- [30] A. Terasaki, T. Majima and T. Kondow, 投稿 準備中.
- [31] J. Tiggesbäumker, L. Köller, K.-H. Meiwes-Broer and A. Liebsch, Phys. Rev. A 48 (1993) R1749.
- [32] A. Terasaki, A. Matsushita, K. Tono, R. T. Yadav, T. M. Briere and T. Kondow, J. Chem. Phys. 114 (2001) 9367; A. Terasaki, T. M. Briere, M. Kulawik, S. Minemoto, K. Tono, A. Matsushita and T. Kondow, J. Chem. Phys. 118 (2003) 2180.
- [33] K. Tono, A. Terasaki, T. Ohta and T. Kondow, Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 133402; J. Chem. Phys. **119** (2003) 11221.
- [34] A. Terasaki, J. Phys. Chem. A (Feature article) 111 (2007) 7671.
- [35] 寺嵜亨,「新しいクラスターの科学」第4章, 菅野暁,近藤保,茅幸二編(講談社サイエン ティフィク,2002) p. 69;里子允敏,同第4章, p. 103;藤間信久,山口豪,同第6章, p. 155.