電子-多価イオン衝突に現れる 共鳴過程の観測

量子·物質工学専攻 大谷俊介研究室 飛山廣継

1. はじめに

1.1. 研究背景

一般的に2 価以上の正負のイオンのこと を多価イオンという。原子から電子を1個 だけ取り去ったものを1価のイオンという ように、取り去る数が q 個であれば q 価の 多価イオンという。また、電子を1つしか 持たないような多価イオンのことを、水素 原子の電子配置と等しいことから、水素様 多価イオンとも言う。特に我々は、極少数 しか電子をもたない、重元素かつ高価数の 多価イオンに注目し、電子と多価イオンの 衝突における原子物理過程の観測を行って いる。この電子と多価イオンは、プラズマ を構成している主役である。核融合炉など の高温プラズマなどの知見を得る上でも、 電子と多価イオンの衝突過程を系統的に測 定することが望まれている。

本研究の目的は、電子と多価イオンの衝 突過程の断面積を測定し、プラズマ中素過 程の基礎データを得ることである。共鳴過 程と呼ばれる衝突過程は、ある特定エネル ギーの電子が関与する極めて大きな断面積 をもつ主要な過程である。

ヨウ素多価イオン(Iq+)、ホロニウム多価イ オン(Hoq+)、ビスマス多価イオン(Biq+)の二 電子性再結合過程について述べる。

1.2. 原子過程

本研究では放射性再結合過程(Radiative Recombination、以降 RR)や二電子性再結 合過程(Dielectronic Recombination、以降 DR)と呼ばれる多価イオンへの電子付着過 程に着目している。図1にはRRを模式的 に示した。これは、多価イオン近傍にきた 自由電子が、光子の放出(X線放射)を伴いな がら、多価イオンの空の軌道へと、捕獲さ れる過程である。



図1 放射性再結合過程

縦軸はエネルギー、黒点は電子を表して いる。また、RR 過程は次のように書くこと ができる。

 $A^{q_{+}} + e^{-} \rightarrow A^{(q_{-}1)_{+}} + \gamma_{RR}$ (1)

DR 過程は、共鳴過程であり、図2にそれ を模式的に示した。これは、結合エネルギ ーEBと電子の運動エネルギーEeの総和 E1 が、結合後の二電子励起状態のエネルギー E2に等しいときに、共鳴的に二電子励起状 態が形成され、そこから光子を放出しなが ら脱励起する過程である。



図2 二電子性再結合過程

この図2にあるようにK殻からL殻へ励 起されると同時に、M殻へ自由電子が捕獲 されるような二電子励起中間状態を介する 場合を、KLM共鳴と呼んでいる。また、X 線放出を伴う DR 過程は次のように書くこ とができ、電子放出を伴うオージェ過程と 競争する。

 $A^{q+} + e^- \rightarrow A^{(q-1)+**} \rightarrow A^{(q-1)+} + \gamma_{DR}$ (2) RR、DR 過程のほかにも、EBIT のトラ ップ領域で考えられる原子物理過程には、 電子衝突による電離、電荷交換反応、トラ ップ領域からのイオンの離脱などがあげら れる。

1.3. 過去の研究報告例

過去の DR 測定の研究報告例を図 3 にあ げる[1]。



図3 クリプトンの DR 研究報告例[1]

これは EBIT を用いてクリプトンの多価 イオンを生成し、電子ビームのエネルギー を走査しながら多価イオンから放出される X線を、電子ビームの方向に対して 90°に 設置された半導体検出器によって計測した ものである。図3の右側に見えるピークは、 矢印で書いてある電離状態(He であれば、 He 様クリプトンを指している)からの DR によるもので、特に KLL 共鳴領域だけを抜 き出したものになっている。EBIT の内部 には、異なる価数の多価イオンが存在する ため、特定価数の DR を測定するためには、 様々な価数の多価イオンから放出される X 線を半導体検出器で分解することが必要に なる。しかし、図3からもわかるように、 半導体検出器の分解能では DR を価数ごと に分離することが困難である。また、共鳴 強度の導出には、理論計算による放射の角 度分布に頼らなければならない。このよう に X 線による DR 測定には、いろいろな問 題点をかかえている。

2. 実験原理

2.1. 引き出しイオンによる DR 測定

本研究では、電離平衡状態に達した EBIT のトラップ領域に存在する多価イオンの価 数分布を計測することで、共鳴過程の測定 を行う方法を用いた。この引き出しイオン による DR 過程の観測では、トラップ領域 から引き出された多価イオンの各価数ごと の強度を計測することで、問題点を解決で きる。この測定原理を説明するには EBIT トラップ領域において成り立つレート方程 式の理解が必要となる。

2.2. レート方程式

レート反応遷移とは単位体積単位時間当 たりにどれだけの反応が起こるかを示し、 単位は[s⁻¹cm⁻³]である。そこで、q 価の多価 イオンの電子衝突における DR、RR、電離、 電荷交換過程をレートで表すとそれぞれ以 下のようになる。 はそれぞれの過程の断 面積である。

$$R_{q \to q-1}^{DR} = \frac{J}{e} n_q \sigma_q^{DR}$$
(3)

$$R_{q \to q-1}^{RR} = \frac{J}{e} n_q \sigma_q^{RR}$$
 (4)

$$R_{q \to q+1}^{EI} = \frac{J}{e} n_q \sigma_q^{EI}$$
 (5)

$$R_{q \to q-1}^{CX} = v n_0 n_q \sigma_q^{CX}$$
(6)

ここで v は中性原子とイオンの相対速度 [cm/s]、no はトラップ領域の中性原子の密 度[cm⁻³]、nq[cm⁻³]はトラップ領域の q 価の 多価イオンの密度、J は電流密度[A/cm²]、e は電荷素量[C]である。トラップ領域におけ る q 価の多価イオンのレートを用いた模式 図を図 4 に示す。



図4 DR を含む q 価イオンのレート模式図 電離平衡を考えることで任意の偏数 k に 対して以下の式を得る[2]。

$$\frac{n_{k-1}}{n_k} = \frac{\sigma_k^{DR} + \sigma_k^{RR} + \left\langle \sigma_k^{CX} \right\rangle}{\sigma_{k-1}^{EI}}$$
(7)

式(7)の右辺において、 k^{DR} は電子エネル ギーが特定の値のときに非常に大きな値と なるが、他の項は電子エネルギーに対して 緩やかに変化する項である。したがって、 nk-1/nkの電子エネルギー依存性を測定し、 緩やかな寄与からの増分を見ることで、DR 過程を観測することができる。また、 k^{DR} について解くと式(7)は以下のようになる。

$$\sigma_{k}^{DR} = \sigma_{k-1}^{EI} \cdot \left(\frac{n_{k-1}}{n_{k}} - BG \right) \quad \because BG = \frac{\sigma_{k}^{RR} + \langle \sigma_{k}^{CX} \rangle}{\sigma_{k-1}^{EI}} \quad (8)$$

式(8)によれば、n_{k-1}/n_kの測定から B.G. に相当する部分を引き、電離断面積の値を 用いることで _kDR の値を導出することが できる。

3. 実験

3.1. 実験概要

ヨウ素、ビスマス、ホロニウムの DR 測 定を行った。これらの重元素の高電離状態 の多価イオンの DR 過程の報告例は極めて 少ない。本研究では電子ビームのエネルギ ーを変えながらトラップ領域の多価イオン の価数分布、二電子励起状態から脱励起し て放出される X 線のエネルギー分布を、多 次元同時計測システムにより測定した。

またヨウ素、ビスマス、ホロニウムの同 位体は1つしか存在しない。このことによ リ、トラップ領域から引き出された多価イ オンを、分析磁石で価数ごとに明瞭に分け ることができる。ビスマスは、安定核の中 で一番大きな原子番号 Z を持つ金属である。 ホロニウムも金属であり、ヨウ素と、ビス マスの中間の Z を持つことから DR の Z 依 存性に関する知見が得られる。

3.2. 実験装置

多価イオン生成装置として Tokyo-EBIT(Electron Beam Ion Trap)[3] を用いている。その多価イオン生成原理を 模式的に図5に示す。



図5 EBIT 内部概略図

EBITは単色の高エネルギー電子ビームに よりトラップされたイオンを逐次電離して いく事で多価イオンを生成する。

また Drift Tube と呼ばれる円筒電極のう ちイオントラップにあたる DT2 にはスリッ トが設けられており、多価イオンからの X 線などを観測することができる。

また生成された多価イオンを軸方向にビ ームとして取り出すことが出来る。

このように EBIT では単色の電子ビーム と多価イオンが相互作用しているため電離 や再結合などのプラズマ素過程のなかで共 現象を調べるのに非常に適した装置である と言える。

3.3. 実験方法

EBIT のトラップ領域から引き出された 隣り合う価数同士の多価イオンの強度比は それぞれの引き出し効率に差がないと考え、 トラップ領域の隣り合う価数同士の多価イ オンの存在比と等しいとして、本実験は行 われた。

EBITのトラップ領域へは、揮発性の高い 沃化メチル(CH₃I)を注入し、ビスマスやホ ロニウムに関しては金属蒸気として注入す ることでそれぞれの多価イオンを生成した。 トラップ領域から引き出された多価イオン を分析磁石で価数ごとに分けたものを計測 するのに位置敏感検出器 PSD、トラップ領 域か放出される X 線のエネルギーを計測す るのにの Ge 半導体検出器を用いた。

実験の計測結果の取り込みに用いた多次 元同時計測システムの模式図を以下の図 6 に示す。



図6 多次元同時計測システム 電離平衡を保つために走査した電子ビー ムエネルギーの時間波形を図7に示す。



図7 電子ビームエネルギーの時間経過

 t_1 はトラップ領域が電離平衡を保障する ために待った時間[s]、 t_2 はデータ溜め込み 時間[s]、 E_e は $t_1 + t_2$ だけ時間が経過した 後の電子ビームエネルギーの変化量[eV]で ある。本実験では $E_e=9eV$ 、 $t_1=1s$ 、 $t_2=9s$ とした。 t_2 の部分のデータのみ使用して解 析を行っている。

3.4. 実験結果

ヨウ素多価イオンについての結果及び導

出した共鳴強度 S をそれぞれ図 8、表 1 に 示す。共鳴強度 S は例えば He 様多価イオ ン S_{He} に対し

$$S_{He} = \int \sigma_{He}^{DR} (E_e) dE_e$$
 (9)

と定義される(共鳴エネルギー)積分断面 積のことである。



図8 電子ビームエネルギーに対する隣接価 数多価イオンの強度比依存性

表1 I 多価イオンの DR 共鳴強度[10⁻²⁰・cm²・eV]

	\mathbf{S}_{He}	\mathbf{S}_{Li}	\mathbf{S}_{Be}	\mathbf{S}_{B}
KLL	39.7	28.6	21.9	11.7
KLM	22.0	15.8	12.7	7.2
KLN	9.5	5.1	3.6	0.8
KLO	6.3	2.4	1.9	0.2

図8の最上段のK-lineの縦軸はX線の(エ ネルギー)積分強度である。Li/He と書かれ ている図は、電子ビームエネルギーに対す るLi様ヨウ素多価イオンとHe様多価イオ ンの強度比であり、He様ヨウ素多価イオン のDR 過程に帰属する結果である。その他 も同様の手順を行っている。前述のように X線の強度変化のDR 観測の中には様々な 価数のイオンの再結合過程が現れているが、 引き出しイオンの観測では、それぞれの価 数の DR 過程を分けることが出来きている。

表 1 の中に S_q^{DR} の表記は q 様ヨウ素多価 イオンの DR 共鳴強度である。

次にホロニウム多価イオンについての結 果及び共鳴強度をそれぞれ図 9、表 2 に示 す。



図9 電子ビームエネルギーに対する隣接価 数多価イオンの存在比依存性

表2 Ho 多価イオンの DR 共鳴強度[10⁻²⁰・cm²・eV]

	\mathbf{S}_{He}	\mathbf{S}_{Li}	\mathbf{S}_{Be}	\mathbf{S}_{B}
KLL	44.1	27.8	18.8	6.6
KLM	9.6	6.7	6.1	5.9
KLN	2.3	1.1	0.8	1.0

最後にビスマス多価イオンについての結 果及び共鳴強度をそれぞれ図 10、表 3 に示 す。L 殻は 2S1/2、2P1/2、2P3/2 に分けられ、 それぞれの軌道を L1、L2、L3、としている。 そして 2S1/2、2P1/2、はエネルギー準位的に 近いので L12と更に省略される。



図10 電子ビームエネルギーに対する隣 接価数多価イオンの強度比依存性

表3 Bi 多価イオンの DR 共鳴強度[10-20・cm²・eV]

	\mathbf{S}_{He}	\mathbf{S}_{Li}	\mathbf{S}_{Be}	S_{B}
KLL	16.8	21.2	6.7	34.6

4. まとめ・考察

固体検出器SSDを用いたX線観測では非 常に困難であった特定価数の多価イオンの DR 測定を、トラップ中に存在する多価イ オンの存在比を計測することで可能とした。 ヨウ素(Z=53)、ホロニウム(Z=67)、ビスマ ス(Z=83)という広範囲のZを持つ重元素多 価イオンに対して様々な電子エネルギーに おける DR 過程について観測することがで き、これらの共鳴強度を導出することがで きた。

参考文献

- [1] R. Radtke *et al.*, Phys. Rev. E 61 1966(2000)
- [2] D. R. DeWitt *et al.*, Phys. Rev. A 44, 7185 (1991)
- [3] 中村信行, 清水宏, 大谷俊介, J.Mass Spectrom. Soc. Jpn 49(6), 229(2001)