

プラズマ光源関連イオンの分光測定

電気通信大学 情報理工学部
先進理工学科 中村信行研究室 岸良子文
平成 26 年 3 月 7 日

1 章 序論

1.1 背景

波長 2~4nm 程度の軟 X 線領域の光は「水の窓」と呼ばれる。「水の窓」領域の軟 X 線は水を透過し、タンパク質、核酸などの生体を構成する有機化合物で吸収されやすい^[1]。従ってこの「水の窓」領域を利用した軟 X 線顕微鏡では生体分子を脱水することなく、生きたまま観察することが可能であり、細胞の反応機構や病気のメカニズムの解明に役立つことから、医療診断や生体の分析分野において期待されている。

現在、「水の窓」領域の X 線顕微鏡用の光源として大型放射光を利用した観測が行われているが放射線による損傷が大きく、また、装置が大型であるため研究室サイズでの利用が困難であるという問題がある。そのため卓上サイズの「水の窓」の軟 X 線光源を実現することが強く望まれており、レーザー生成プラズマがその候補に挙げられている。レーザー生成プラズマ光源はターゲットにレーザーを照射することでスポットプラズマを形成し、そのプラズマ中の多価イオンの発光を利用するものである。

ターゲットとして 2~4nm に渡り強い発光を示す Zr 多価イオンが候補に挙げられている。Zr の Zr¹²⁺ から Zr²¹⁺ までの多価イオンの最外殻電子は 3d 軌道に存在する。3d 電子の励起、脱励起では電気双極子遷移に従い、3d-4p, 3d-4f 遷移が支配的となる。

それらの遷移は微細構造によりさらに分裂し、その発光線同士が重なり合うことで、幅が広く強度の強い発光を示す。

1.2 研究目的

レーザー生成プラズマを使用した Zr 多価イオンの発光ではさまざまな価数の Zr の 3d-4f, 3d-4p 遷移が「水の窓」領域で観測されるため、それぞれの価数ごとに発光の波長を同定することが難しい^[2]。本研究では Zr 多価イオンの発光スペクトルをイオンの価数ごとに観測し、軟 X 線光源への適正を調べることを目的としている。そのため、本実験では電子ビームイオントラップを用いて電子ビームエネルギーにより価数を選択的に生成しながら発光スペクトルを観測し、価数ごとの遷移の同定を試みた。

2 章 実験装置

実験装置の概略図を図 1 として示す。

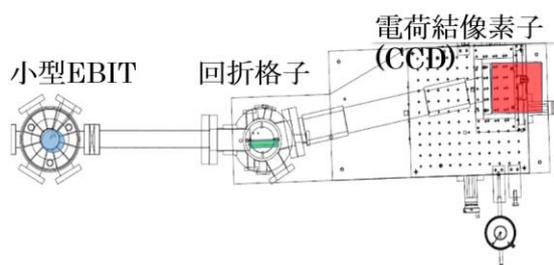


図 1 実験装置の概略図

電子ビームイオントラップ (EBIT) により多価イオンを生成し、回折格子により多価イオンにより生じる光を波長ごとに分散し、電荷結合素子 (CCD) により回折光を検出す

る。

2.1 電子ビームイオントラップ [Electron Beam Ion Trap : EBIT]

多価イオンの生成原理を図 2 に示す。

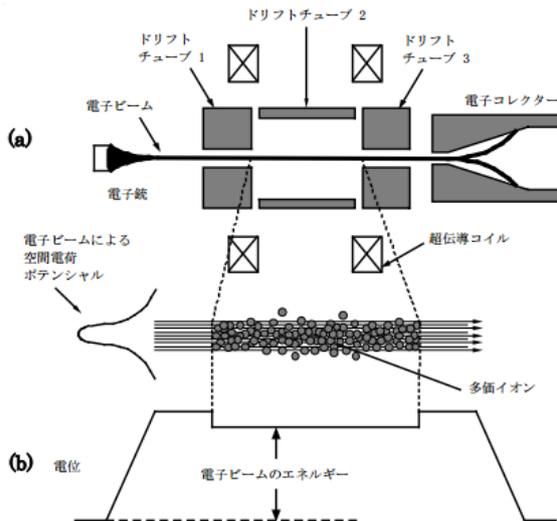


図 2 EBIT の多価イオンの生成原理

(a) 電極配置 (b) 電位分布の模式図

この装置は大きく分けて電子銃、3つのドリフトチューブ(DT)、電子コレクターから成る。DTの周りにはヘルムホルツ型超伝導コイルを配置し、軸方向の強磁場を形成する。電子銃から放出した電子ビームは電位勾配により加速され、DTに入射する。3つのDTのうち中央の電極(DT2)の電位を両極(DT1,DT3)より低くして、生成されたイオンを軸方向に封じ込める。電子ビームの空間電荷によりイオンは径方向に閉じ込められ、そのイオンが電子の逐次衝突を受けることで、電離が進み多価イオンが生成される。DTを通過した電子は電子コレクターで回収される。

EBIT内のプラズマは単色電子ビームとトラップされた多価イオンからなる単純化

されたプラズマ光源であり、電子ビームエネルギーを適宜調整することによって、目的の多価イオンを選択的に狭い価数分布で生成することができる。今回の実験に使用した小型EBIT³⁾の仕様を表1に示す。

表 1 小型 EBIT の仕様

装置の大きさ	~0.5[m]
最大電子ビームエネルギー	1[keV]
最大電子ビーム電流	~10[mA]
電子銃パービアン	0.4[$\mu\text{A}/\text{V}_a^{3/2}$]
最大電流密度	32[A/cm]
最大磁場強度	0.2[T]
イオントラップ領域の長さ	2[cm]

2.2 極端紫外分光器

本研究では軟 X 線の観測波長領域に対応した極端紫外分光器を用いている。実験で使用する EBIT の電子ビームは細い線状の光源であるため、スリットを使用する必要なく多価イオンからの光は直接回折格子に入射され、分散された光は電子冷却型の背面照射型 CCD で検出される。極端紫外領域では鏡面反射率が悪く凹面鏡といった光学系は使用できないため、平面結像型の斜入射不等間隔凹面回折格子を使用した。

3 章 Zr 多価イオンの分光測定

本実験では EBIT を用いて価数ごとの遷移の同定を試みた。なお、Zr 多価イオンの価数ごとの生成を正確に確認できるよう 3d-4f, 3d-4p 遷移の二つを観察した。Zr 多価イオンにおいて 3d 軌道が閉殻であり、3d-4f 遷移を初めに生じる Zr¹²⁺を測定範囲に含むよう 3~8nm で測定を行った。表 2 に Zr のイオン化エネルギーを示す。

表 2 Zr のイオン化エネルギー

Zr 多価イオンの価数	イオン化エネルギー[eV]
12	239
13	428
14	477
15	526
16	578
17	631

Zr のイオン化エネルギーを参考にしながら電子ビームを 220 ~800eV まで変化させ価数ごとの Zr 多価イオンの生成を試みた。実験により得られたジルコニウムの発光スペクトルを図 3 に示す。

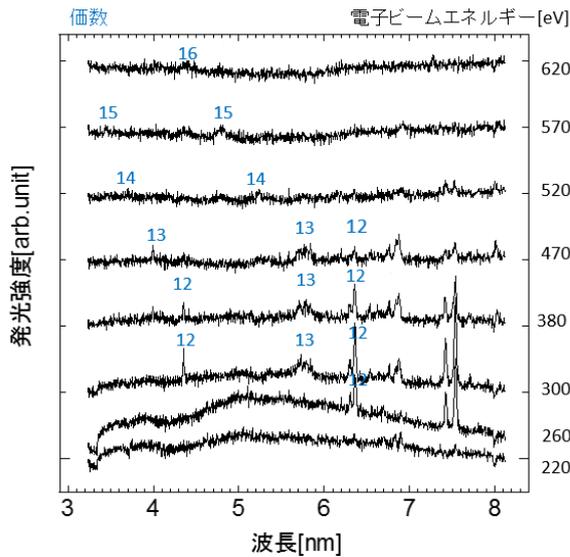


図 3 Zr 多価イオンの発光スペクトル

比較のため、3d-4f,3d-4p 遷移の Flexible Atomic Code [FAC]^[4]による計算結果を図 4 に示す。縦軸の gA は統計重率(g)と遷移確率(A)の積である。

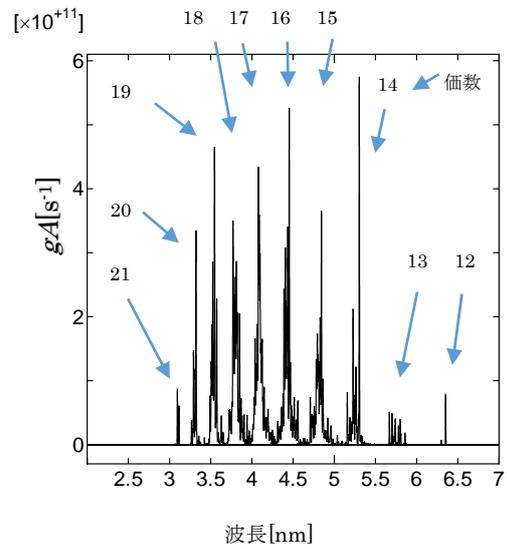
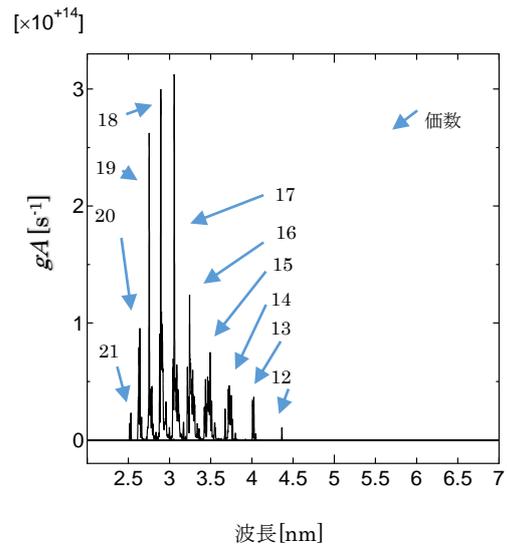


図 4 (a)3d-4p 遷移の gA



(b)3d-4f 遷移の gA

3d-4f,3d-4p 遷移の FAC による計算値と実験結果を比較し、Zr¹⁵⁺までの発光が観察されていることが確認できた。一方、Zr¹⁶⁺の 3d-4p 遷移は確認できたが 3d-4f 遷移は観測できなかった。また、660eV 以上では発光が見られず、Zr¹⁷⁺からの発光は確認出来なかった。これは短波長側での分光器の効率が低下しているためだと考えられる。本

実験で用いた回折格子はブレイズ波長が 9nm であり、短波長になるにつれ効率が低くなる。3d-4f,3d-4p 遷移は価数の増加とともに短波長側にシフトし、回折格子の特性により観測できなかったと思われる。よって「水の窓」での発光が観測されるようなブレイズ波長を持つ回折格子を使用する必要がある。

5.8nm 付近の発光は FAC による計算との比較により、Zr¹³⁺の 4p-3d 遷移と考えられる。Zr¹²⁺は Ni 様イオンであるため、その電子配置から準安定状態を形成することがある。3d に 10 個あるうちの一つの電子が励起され、4p に遷移した場合、70%の分岐比で 3d に脱励起するが、30%の分岐比で 4s に遷移し、準安定状態を生成する。準安定状態は Zr¹²⁺の基底状態と比べ、電離に必要なエネルギーが低い。そのため Zr¹³⁺がイオン化エネルギーよりも低い値で生成されたと考えられる。

6.8nm 付近の発光は Zr¹³⁺と同様に 300eV で発光が観測され、520eV では発光が観測されなくなり、電子ビームエネルギーに対する依存性が類似しているため、Zr¹³⁺の別の遷移による発光だと思われる。なお 6.8nm 付近の発光のうち 220eV で観測された発光は 260eV で消えているため Zr(t-OC₄H₉)₄ のうちの Zr 以外の元素によるものか不純物による発光と思われる。

7.3nm 付近の発光は Zr¹²⁺と同様に 260eV で発光が観測され、520eV では発光が観測されなくなり、電子ビームエネルギーに対する依存性が類似しているため Zr¹²⁺の別の遷移による発光だと思われる。

4 章 まとめと今後の展望

Zr¹²⁺から Zr¹⁶⁺について、3d-4f,3d-4p の遷移を観測し、それぞれの価数のイオンが生成されていることを実験結果から確認した。使用した回折格子の効率が短波長になるにつれ低下することから「水の窓」領域での発光の価数ごとの遷移の同定には成功しなかった。5.8nm 付近の Zr¹³の 3d-4p 遷移はイオン化エネルギーに対し、低いエネルギーで生成した。6.8nm 付近、7.3nm 付近の発光はそれぞれ 3d-4f,3d-4p 遷移以外の Zr¹²⁺と Zr¹³⁺による発光だと思われる。それらの発光はレーザー生成プラズマにおける「水の窓」領域以外での発光によるエネルギー損失を考える上で一つの重要な情報となるため発光の詳細を調べる必要がある。

今回の実験では観測された発光強度は短波長側では非常に微弱であった。今後はより短波長の軟 X 線に対応した回折格子を用いて「水の窓」領域における Zr 多価イオンの 3d-4f,3d-4p 遷移の価数分離を試みる。また、3d-4f,3d-4p 遷移以外の発光を同定し、Zr 多価イオンの発光特性を調べる必要がある。

参考文献 付録

- [1] J. Kirz and D. Sayre, Synchrotron Radiation Research (Plenum Press, New York and London, 1980) p.277.
- [2] Bowen Li, Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Weihua Jiang, Akira Endo, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan Appl. Phys. Lett. 102, 041117 (2013)
- [3] 菊池浩行他、日本物理学会第 63 回年次大会 (2008) 23pRA-7
- [4] M. F. Gu, Canadian Journal of Physics, 2008, 86(5): 675-689