

準安定状態を介した多価イオンの電離・発光過程の観測

中村信行研究室 児玉 龍之介

1 序論

1.1 プラズマ分光診断

宇宙の物質は約 99% がプラズマ状態であり、イオンと電子が混在している。特に太陽コロナのような高温プラズマ中においては原子や分子が激しく衝突しあうことで電子が剥ぎ取られ、高価数のイオンを生じるため、多価イオンが主成分となる。例えば太陽コロナ内に多く存在する鉄多価イオンの極端紫外領域の発光線は電子密度の診断に用いられる [1]。また国際核融合実験炉の壁材であるタングステンの多価イオンは高温プラズマ中でも完全に電離しないため、放射冷却によってプラズマの温度を下げ、プラズマの状態を変化させる要因のひとつになる。このようにプラズマにとって良くも悪くも作用する多価イオンの発光線の観測や同定は、プラズマの状態を理解するために重要になる。

1.2 Pd 様イオンの準位交差

本研究は $4d^{10}$ 閉殻構造を持つ Pd 様イオンと、その近傍で価電子を 1 つから 2 つ持つイオンに注目した。図 1.1 に示したように Pd 様イオンでは、原子番号 $Z = 56$ 近傍で $4f - 5p$ 準位交差が起きる。 $Z = 56$ より小さい原子の場合、 $4d^{10}4f(J = \frac{13}{2})$ は 1 ms 程度の寿命で電気四重極遷移 (E2) により $4d^{10}5p(J = \frac{9}{2})$ に遷移する。そのため 10^{10} cm^{-3} 程度の低密度のプラズマでは大きい占有密度を持たない。しかし原子番号 $Z = 56$ より大きい原子の場合は $4d^{10}4f(J = \frac{13}{2})$ が $4d^{10}5p(J = \frac{9}{2})$ よりエネルギーが低く遷移が起こらないため約 170 s の寿命を持つ。このように準位交差によって準安定

状態の寿命が変化するため電離や発光過程に影響を及ぼすことが考えられる。

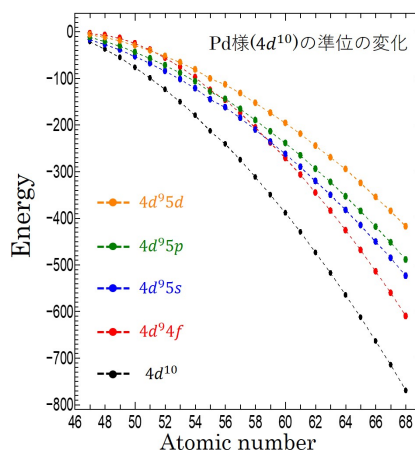


図1.1 Pd 様イオンの準位交差

2 実験

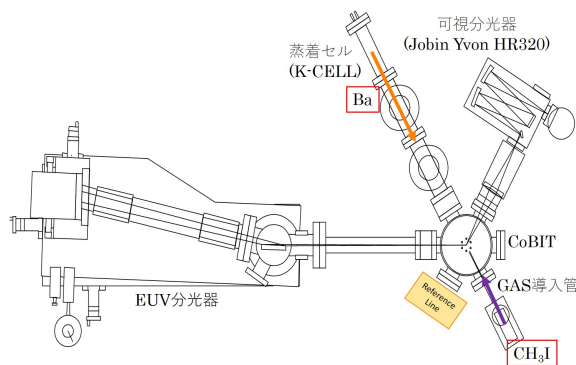


図2.1 装置の配置

電子ビームイオントラップ (Electron Beam Ion Trap:EBIT)[2] は多価イオンからの X 線などを観測をすることを目的に作られた装置である。電子銃と 3 つの円筒電極からなるドリフトチューブ (Drift Tube:DT)、超伝導コイ

ル、電子コレクターで構成される。イオンは円筒電極で生成する軸方向の井戸型ポテンシャルと電子ビームにより生成される動径方向の空間電荷ポテンシャルによって3次的にトラップされる。トラップしたイオンに対して電子衝突により電子を1つ1つ剥ぎ取る逐次電離を利用して高価数の多価イオンを生成することができる。電子ビームエネルギーはドリフトチューブDT2と電子銃内のカソードとの電位差によって決定する。本実験では小型電子ビームイオントラップ (Compact Electron Beam Ion Trap:CoBIT)[3] を用いて、極端紫外領域と可視領域の発光線を観測した。極端紫外分光器は日立ハイテクノロジー社製の溝本数1200本/mmの平面結像型不等間隔凹面回折格子[6, 7]を用いた。可視分光器はJobin Yvon製のHR320でCzerny-Turner型を用いており、溝本数が300本/mm,1200本/mmの反射型回折格子を取り付けて観測した。検出器にはそれぞれPrinceton Instruments社製のCCDカメラ[5]、Andor社のiDus416のCCDカメラ[8]を用いた。図2.1は今回使用した実験装置の配置概略図である。CoBITに可視分光器と極端紫外分光器が取り付けられており、ヨードメタンはガス導入管から、バリウムは蒸着セル(Knudsen-CELL)を用いてCoBIT内に導入することで多価イオンを生成し分光実験を行った。

3 結果および考察

3.1 バリウム多価イオンの発光線の一例

バリウムイオンの発光線の観測結果とFlexible Atomic Code(FAC)[9]を用いた衝突輻射モデルによる計算結果の一例を図3.1、模式的なエネルギー準位図を図3.2に示す。

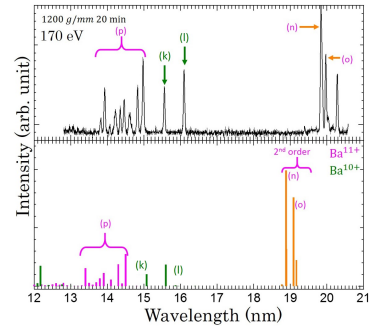


図3.1 観測結果と理論計算の比較

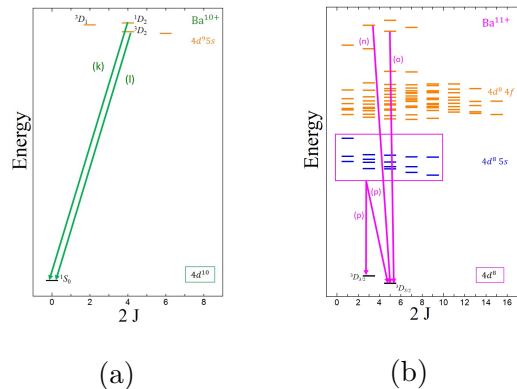


図3.2 (a)Ba¹⁰⁺、(b)Ba¹¹⁺の模式的なエネルギー準位図

表3.1 バリウム多価イオンの結果と比較

イオン	波長 (nm)	遷移	CR 計算結果の波長 (nm)	NIST(nm)
Ba ⁸⁺	(a)499.85	5s5p(³ P ₂) - 5s5p(³ P ₁)	511.64	500.00[10]
	(b)13.79	4d ² 5s ² 5p - 4d ¹⁰ 5s ²	13.61	13.76[10]
	(c)18.14	5s6p - 5s ²	17.90	18.13[10]
	(d)19.29	4d ² 5s ² 4f - 4d ¹⁰ 5s4f	18.86	
Ba ⁹⁺	(e)13.26~14.00	4d ² 5s5p - 4d ¹⁰ 5s	13.28~13.80	13.2493~13.7975[10]
	(f)15.47	6g - 4f	15.10	15.46[10]
	(g)16.78~18.04	4d ² 5s4f - 4d ¹⁰ 4f	16.70~18.02	
	(h)19.49	5g(² G ₂) - 4f(² F ₂)	18.88	19.4938[10]
Ba ¹⁰⁺	(i)19.56	5g(² G ₂) - 4f(² F ₂)	18.94	19.5516[10]
	(j)557.62	4d ² 5s(² D _{3/2}) - 4d ¹⁰ 5s(² D _{3/2})	573.39	557.88[11]
	(k)15.56	4d ² 5s(¹ D ₂) - 4d ¹⁰ (¹ S ₀)	15.07	15.54[12]
	(l)16.10	4d ² 5s(¹ D ₂) - 4d ¹⁰ (¹ S ₀)	15.59	16.08[12]
Ba ¹¹⁺	(m)453.33	4d ² (² D _{3/2}) - 4d ¹⁰ (² D _{3/2})	453.56	453.53[4]
	(n)(9.92)	4d ² 4f(J = 3/2) - 4d ¹⁰ (² D _{3/2})	9.44	9.915[13]
	(o)(9.98)	4d ² 4f(J = 5/2) - 4d ¹⁰ (² D _{3/2})	9.54	10.01[11]
	(p)13.83~14.97	4d ² 5s - 4d ¹⁰	13.40~14.46	

図には示していないが可視領域の発光線も極端紫外領域の発光線と同時観測した。各発光線は理論計算と比較し、構造の一致から同定を行った。表3.1に極端紫外領域、可視領域の発光線の波長、遷移、計算結果の波長、NISTのデ

データベースの波長をまとめた。(d)、(g)、(p)の発光線は過去に直接観測が無い発光線で、(a)、(f)、(j)、(k)、(l)の発光線はエネルギー準位は既知であるが過去に直接観測が無い発光線、(b)、(c)、(e)、(h)、(i)、(m)、(n)、(o)は過去にも直接観測例のある発光線で桃色の文字にした。また、赤い括弧で囲われた波長は2次光の観測から求めたものである。

3.2 ヨウ素多価イオンの発光線の一例

ヨウ素イオンの発光線の観測結果とFACを用いた衝突輻射モデルによる計算結果の一例を図3.2に、模式的なエネルギー準位図を図3.4に示す。

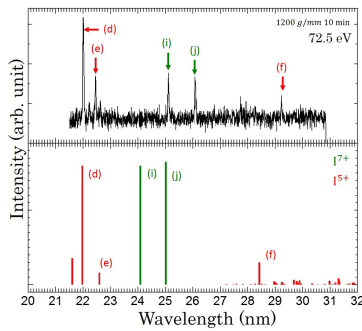


図3.3 ヨウ素多価イオンの発光線と理論計算の比較

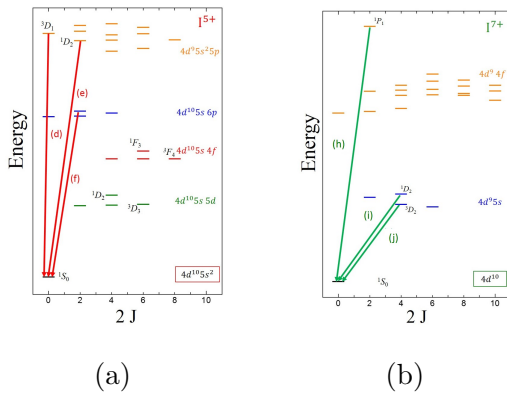


図3.4 (a)I⁵⁺ と (b)I⁷⁺ の模式的なエネルギー準位図

表3.2 ヨウ素多価イオンの同定結果と理論計算の比較

イオン	波長 (nm)	遷移	CR 計算結果の波長 (nm)	NIST(nm)
I ⁵⁺	(a)453.41	5s4f(³ F ₃) - 5s5d(³ D ₂)	426.94	
	(b)467.47	5s4f(³ F ₄) - 5s5d(³ D ₃)	449.83	
	(c)493.53	5s4f(¹ F ₃) - 5s5d(¹ D ₂)	484.70	
	(d)22.01	4d ⁹ 5s ² 5p(² D ₁) - 4d ¹⁰ 5s ² (¹ S ₀)	21.75	21.71[14]
	(e)22.45	4d ⁹ 5s ² 5p(¹ D ₂) - 4d ¹⁰ 5s ² (¹ S ₀)	22.36	22.07[14]
	(f)29.23	5s6p - 5s ²	28.58	28.58[14]
I ⁶⁺	(g)27.74	4d ⁹ 4f(¹ D ₂) - 4d ¹⁰ (¹ S ₀)	26.63	
	(h)(13.39)	4d ⁹ 4f(¹ P ₁) - 4d ¹⁰ (¹ S ₀)	12.64	
I ⁷⁺	(i)25.11	4d ⁹ 5s(¹ D ₂) - 4d ¹⁰ (¹ S ₀)	24.08	25.25[14]
	(j)26.09	4d ⁹ 5s(³ D ₂) - 4d ¹⁰ (¹ S ₀)	25.01	26.20[14]
	(k)694.64	4d ⁹ (² D _{3/2}) - 4d ⁹ (² D _{5/2})	693.45	
	(l)(12.53)	4d ⁸ 4f - 4d ⁹ (² D _{3/2})	11.96	
(m)22.22~24.04	4d ⁸ 5s - 4d ⁹	20.59~22.63		

(a)、(b)、(c)、(g)、(h)、(k)、(l)、(m)の発光線は過去に直接観測が無い発光線で、(d)、(e)、(f)、(i)、(j)はエネルギー準位は既知であるが過去に直接観測が無い発光線である、また赤い括弧で囲われた波長は2次光の観測から求めたものである。

3.3 電子ビームエネルギー依存性

3.3.1 Rh 様イオン (4d⁹) 発光線の電子ビームエネルギー依存性

図3.5の左図はBa¹¹⁺の4d⁹(²D_{3/2}) - 4d⁹(²D_{5/2})の発光線を150 eV~180 eVまで電子ビームエネルギーを変化させて観測したもので、右図はI⁸⁺の同遷移の発光線を105 eV~135 eVまで電子ビームエネルギーを変化させて観測したものである。これらの発光強度のエネルギー依存性を図3.6、図3.7に示す。

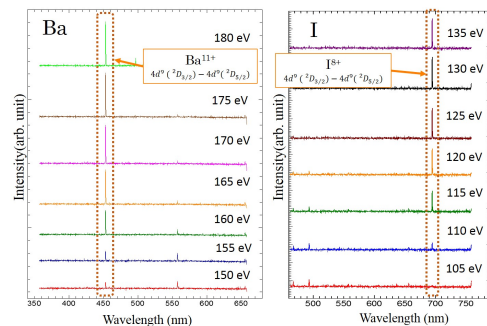


図3.5 I⁸⁺ と Ba¹¹⁺ のスペクトルの電子ビームエネルギー依存性

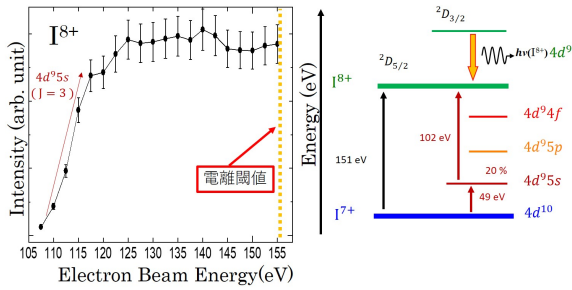


図3.6 I^{8+} の発光線強度の変化と模式的なエネルギー準位図

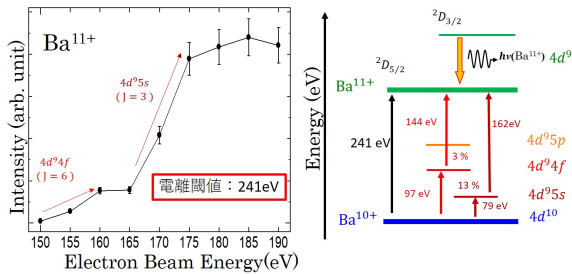


図3.7 Ba^{11+} の発光線強度の変化と模式的なエネルギー準位図

I^{8+} を生成するために必要なエネルギーは 155 eV であるが、図 3.6 から分かるようにその閾値より小さい 105 eV 付近から I^{8+} の発光線が観測されている。理由として準安定状態 $4d^9 5s$ からの電離が考えられる。 $4d^9 5s$ は計算上約 1000 s の寿命を持ち、衝突輻射モデルによる計算では 20 % と大きな占有密度を持つ。この $4d^9 5s$ からは準位図に書いてあるように 102 eV で電離することが可能になる。このため 105 eV 付近から電離が起きたと考えられる。同様に Ba^{11+} を生成するために必要なエネルギーは 241 eV であるが図 3.7 から分かるようにその閾値より小さい 155 eV 付近から Ba^{11+} の発光線が観測されている。更に Ba^{11+} の発光強度は上昇し一旦なだらかになった後、再び上昇するという 2 段階の変化を示した。理由と

して 1 段階目は準安定状態 $4d^9 4f$ からの電離が考えられる。 $4d^9 4f$ は計算上約 170 s の寿命を持ち、衝突輻射モデルによる計算では 3 % の占有密度を持つ。この $4d^9 4f$ からは準位図に書いてあるように 144 eV で電離することが可能になる。このため 150 eV 付近から電離が起きたと考えられる。また 2 段階目は準安定状態 $4d^9 5s$ からの電離が考えられる。 $4d^9 5s$ は計算上約 250 s の寿命を持ち、衝突輻射モデルによる計算では 13 % と大きな占有密度を持つ。この $4d^9 5s$ からは準位図に書いてあるように 162 eV で電離することが可能になる。このため 165 eV 付近から電離が起きたと考えられる。

これらの結果からヨウ素の場合は準安定状態 $4d^9 5s$ のみが発光に関わっていたが、バリウムの場合は $4d^9 5s$ のみならず $4d^9 4f$ 準位も発光線に影響を与えた。この理由は原子番号 $Z = 56$ 近傍のイオンでは $4f - 5p$ の準位間で交差が起きるためである。 $4f$ 準位には角運動量の大きな準位があり、バリウムの場合には約 170 s の寿命を持つが、 $5p$ 準位より $4f$ 準位のエネルギーが高いヨウ素の場合は電気四重極子遷移 (E2) が 1 ms 未満で起こり放射する。よって電子ビームエネルギー依存性におけるバリウムとヨウ素の発光線の振る舞いの違いは $4f - 5p$ の準位交差が要因のひとつであると推測できる。

3.3.2 Pd 様イオン ($4d^{10}$) の電子ビームエネルギー依存性

図 3.8 の左図は Ba^{10+} の $4d^9 5s(^3D_2) - 4d^9 5s(^1S_0)$ の発光線を 100 eV ~ 150 eV まで電子ビームエネルギーを変化させて観測したもので、右図は I^{8+} の同遷移の発光線を 90 eV ~ 130 eV まで電子ビームエネルギーを変化させて観測したものである。

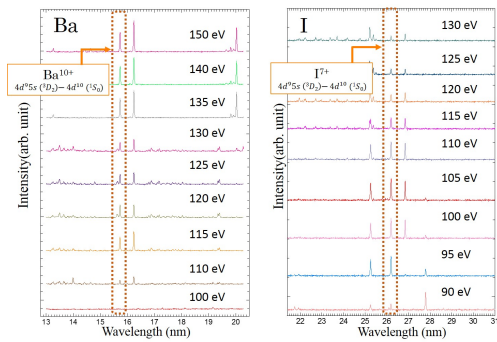


図3.8 I^{7+} と Ba^{10+} の電子ビームイオン依存性

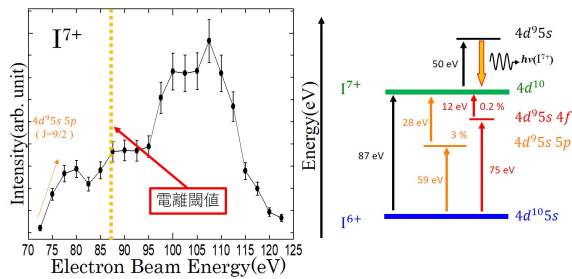


図3.9 I^{8+} の発光線強度の変化と模式的なエネルギー準位図

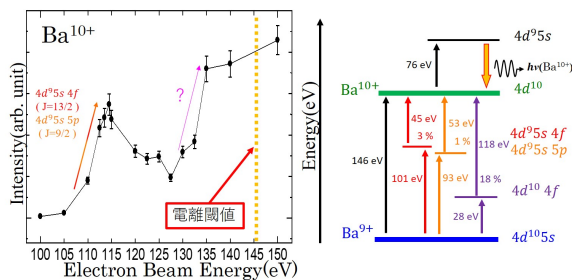


図3.10 Ba^{10+} の発光線強度の変化と模式的なエネルギー準位図

これらの発光強度のエネルギー依存性を図 3.9、図 3.10に示す。

I^{7+} を生成するために必要なエネルギーは 87 eV であるが図 3.9から分かるようにその閾値より小さい 70 eV 付近から I^{7+} の発光線が観

測されている。理由として準安定状態 $4d^9 5s 5p$ からの電離が考えられる。 $4d^9 5s 5p$ は計算上約 100 ms の寿命を持ち、衝突輻射モデルによる計算では 3 % の占有密度を持つ。この $4d^9 5s 5p$ からは準位図に書いてあるように 60 eV で電離することが可能になる。このため 70 eV 付近でも発光線が観測できたと考えられる。同様に Ba^{10+} を生成するために必要なエネルギーは 146 eV であるが図 3.10から分かるようにその閾値より小さい 105 eV 付近から Ba^{10+} の発光線が観測されている。更に Ba^{10+} の発光線強度は上昇し一旦下降した後、再び上昇するという特異な強度変化を示した。理由として 105 eV 付近の強度上昇は準安定状態 $4d^9 5s 4f$ からの電離が考えられる。 $4d^9 5s 4f$ は計算上約 470 s の寿命を持ち、衝突輻射モデルによる計算では 3 % の占有密度を持つ。この $4d^9 5s 4f$ からは準位図に書いてあるように 101 eV で電離することが可能になる。このため 105 eV 付近から電離が起きたと考えられる。また 125 eV 付近の強度上昇は準安定状態 $4d^{10} 4f$ 準位が関わる可能性がある。準位図に書いてあるように $4d^{10} 4f$ は電子ビームエネルギーが 118 eV で電離し、 Ba^{10+} の発光線を観測できると考えられ、120 eV 付近から発光線を観測する可能性がある。しかし Ba^{10+} の発光強度の上昇は 125 eV 付近からであり、118 eV 付近では Ba^{10+} の発光強度はあがることなくむしろ低下している。このことから $4d^{10} 4f$ 準位は 2 段階目の強度上昇には関わっていないと考えられる。他に占有密度が大きく、125~130 eV 付近で電離することのできる準位を衝突輻射モデルによる計算から探したが見当たらなかった。よって 2 段階目の発光線強度の変化はエネルギー準位の構造だけでは説明がつかないという結果となった。

4 結論

ヨウ素とバリウムの Cd 様~Rh 様多価イオンに対して、可視域と極端紫外域における分光測定を行った。得られたスペクトルに対して衝突輻射モデルによる計算と比較し同定を行った。発光線強度の電子ビームエネルギー依存性に関しては等電子系列のイオンであっても原子番号によって励起準位の準安定状態が関わることで発光の振る舞いが変わることがわかった。特に Ba¹⁰⁺ の電子ビームエネルギー依存性において発光線強度が上昇し一旦下降した後再び上昇する特異な発光線強度の変化が確認された。しかし、発光線強度が再び上昇する部分は、どの準安定状態が関わるか分からず、エネルギー準位の構造だけでは発光線強度の変化は説明できなかった。

参考文献

- [1] N. Nakamura et al., ApJ, (2011)
- [2] M.A.Levine et al., Physica Scripta T22, 157 (1988)
- [3] N. Nakamura et al., Review of Scientific Instruments 79, 063104 (2008)
- [4] J. Sakoda et al., Physica Scripta T114 (2011) (2008)
- [5] prom-sys.com/pdf/400bln.pdf.
- [6] 原田達男 喜多敏昭 収差補正回折格子の設計と応用 日立製作所中央研究所 (1989)
- [7] 原田達男 軟 X 線分光回折格子 日立製作所中央研究所 (1987)
- [8] <http://www.andor.com/scientific-cameras/idus-spectroscopy-cameras/idus-416-ccd>.
- [9] M. F. Gu, Canadian Journal of Physics, 2008, 86(5), 675 (2011)
- [10] S. S. Churilov and Y. N. Joshi, Physica Scripta. Vol. 62, 282-288 (2000)
- [11] S. S. Churilov et al., Physica Scripta. Vol. 66, 293-307 (2002)
- [12] S. S. Churilov et al., Physica Scripta. Vol. 61, 420-430 (2000)
- [13] S. S. Churilov and Y N Joshi , Physica Scripta. Vol. 73, 188-195 (2006)
- [14] V. Kaufman and J. Suger, Y. N. Joshi J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 5 (1988)