



小特集 多価イオン原子過程の基礎と拓がる応用研究

2. 多価イオン原子過程の基礎

2.1 電子-多価イオン

渡辺 裕文, 加藤 太治¹⁾

CREST, 科学技術振興機構, ¹⁾核融合科学研究所

(原稿受付: 2007年4月25日)

多価イオン生成技術およびその計測技術の発達により, 高温プラズマ診断や光源開発の基礎となる電子-多価イオンの相互作用の研究が大いに進んだ. まず, 多価イオンの再結合過程の系統的な測定が行えるようになった. また, 電子衝突電離過程における相対論効果や多電子励起状態を経た間接電離の効果を検証することも可能になりつつある. 本稿では, 電子ビームイオントラップと重イオン蓄積リングでの測定結果を紹介しながら, 多価イオンの電子衝突過程について最近までに明らかになってきた知見を概説する.

Keywords:

electron scattering, ionization, excitation, dielectronic recombination, relativistic effect, electron-beam-ion-trap

2.1.1 はじめに

多価イオンというのは, 電子に対して静電的なブラックホールである. 巨大なクーロン引力により電子の弾性散乱(ラザフォード散乱)が強くなるし, ひとたび多価イオンのクーロン引力場にトラップされた電子は, ほとんどの場合, 光を放出してポテンシャルの底に落ちて束縛されてしまう. 束縛された電子を解き放つには大きな投入エネルギーが要り, その可能性(断面積)も低い. つまり, 多価イオンを生成し高電離状態に保つには, 高エネルギー環境下に原子を置かなければならない.

現在の実験室での多価イオンの生成は主に高エネルギー電子の衝突によるものである. 3章で解説される電子サイクロトロン共鳴イオン源(ECRIS)や電子ビームイオン源(EBIS)はその代表例である. レーザー生成プラズマの場合でも, レーザーで加熱された電子の衝突により原子の電離が進み多価イオンが生成される. 重イオン加速器からの高速イオンを薄膜に当てる方法では, 薄膜中の電子との衝突でイオンの電離が進み多価イオンが生成される. 高速イオンの静止系でみれば, 相対的には高エネルギー電子との衝突と物理的に同じである. したがって, 電子と多価イオンの相互作用の物理研究は, 応用研究に供するための多価イオン生成技術に直結しているといえる.

核融合プラズマや高エネルギー天体(太陽コロナや超新星残骸など)からの光には重元素の多価イオンのスペクトル線が確認されており, スペクトル線の発光には高エネルギー電子の衝突が関与している. 多価イオンは自由電子に対して強いクーロン引力をもつため, いったん自由電子を準安定な励起単位(自動電離状態)にトラップすると, 電子を開放するよりも光を放射して再結合しやすい(二電子

性再結合[Dielectronic Recombination; DR]と呼ばれるこの過程については次節で詳しく説明する). そのため, 多価イオンの場合には, 電子衝突によって標的イオンの束縛電子が直接励起されて生じるスペクトル線(共鳴線)の傍(通常は長波長側)に, DRによってできた電離度が一つだけ低いイオンからのスペクトル線(サテライト線)が顕著に現れる. このサテライト線と共鳴線の強度比からプラズマの電子温度を求めることができる. また, DRにより電子の運動エネルギーが光放射エネルギーとして失われるので, プラズマの電子温度が下がる(放射冷却). これを利用して, 磁場閉じ込め核融合装置の周辺プラズマの温度を冷やすことができる. 電子と多価イオンの相互作用に関する知見は, このようなプラズマ診断・制御に大いに役立つ.

X線や極端紫外域の光源開発では, 電子衝突により励起された多価イオンからの発光スペクトルを精密に予測することが光源の高効率化のために重要である. 多価イオンの電子衝突励起・電離・再結合過程の詳細な知見に基づいてはじめてスペクトルの正確なシミュレーションが可能となる.

さて, 多価イオンの電子衝突過程の研究はどこまで進んでいるのか? 次節で電子ビームイオントラップ(EBIT)と重イオン蓄積リングを用いた実験の具体例を示しながら解説したい. EBITは, 高エネルギー・大電流電子ビームをイオントラップに注入し, そこに閉じ込められているイオンを逐次電離して多価イオンを生成する装置である. EBITに閉じ込められている多価イオンは電子ビームと絶えず相互作用しており, そこからは励起・電離・再結合により生じた励起状態からの光の放射が観測される. そこで, 多価イオンが発するスペクトル線の波長や強度を解析

することにより、実験的に多価イオンのエネルギー準位や励起・電離・再結合の断面積を求めることができる。EBITのより詳しい原理については3章を参照していただきたい。重イオン蓄積リングは加速器やイオン源からのイオンビームの蓄積と冷却を行い、高品質イオンビーム生成に用いられる。イオンを冷却するために重イオン蓄積リングに備えられた電子冷却器の電子は周回するイオンの冷却に用いられるだけでなく、電子とイオンによる再結合過程や電離過程の測定に用いられるようになった。重イオン蓄積リングでは重元素の多価イオンを μA から mA のオーダーで蓄積することができ、電子冷却器の電子温度は極めて低いため、重イオン蓄積リングと電子冷却器を用いた測定では極めてエネルギー分解能の高いスペクトルを高効率で得ることができる。重イオン蓄積リングを用いた実験についての詳細は文献を参照していただきたい[1-4]。EBITと重イオン蓄積リングを用いることで、高エネルギー電子と多価イオン衝突過程の精密な研究が進み、その理解は急速に深まった。

2.1.2 多価イオンと電子の再結合過程

多価イオンと電子の相互作用の具体的な例を示すために、多価イオンと電子が相互作用した際に放出されるX線のスペクトルを紹介する。図1はEBITにより生成した鉄のヘリウム様多価イオンからのX線強度を相互作用する電子のエネルギーとX線エネルギーに対して描いたスペクトルである。図1のスペクトルの測定方法については文献を参照していただきたい[5]。

図1には多価イオンと電子の相互作用による特徴的な構造が現れている。軸に対して斜めに帯状に現れている構造は放射性再結合(Radiative Recombination; RR)と呼ばれる過程によるX線である。RRは自由電子がイオンに捕獲される際に生じる余剰エネルギーを光を放出することにより消費する過程である(図2(a))。



X線エネルギーを E_x 、電子エネルギーを E_e 、再結合後のイオンの電離エネルギーを I_p とすると、

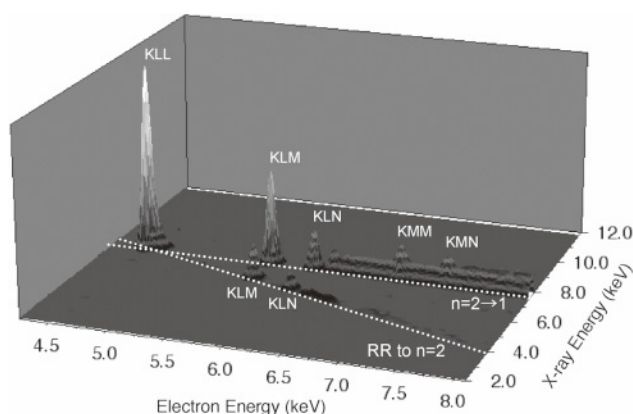
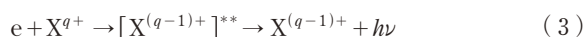


図1 EBITを用いて測定した鉄のヘリウム様イオンからのX線スペクトル。

$$E_x = E_e + I_p \quad (2)$$

の関係になるため、図1では軸に対して斜めの帯状の構造になる。ヘリウム様イオンの場合最もエネルギー的に低い空孔は $n=2$ にあり、図1には $n=2$ へのRRによるX線が現れている。

図1にはいくつかのピーク状の構造が現れている。このピークはDRによるX線である。DRは二電子励起状態を経由して、光の放出を伴う電子捕獲過程であり、



と表される。模式的に図2(b)に表したが、 I_1 (入射電子が励起準位に束縛される場合の余剰エネルギー)と I_2 (標的電子の励起に要するエネルギー)が等しい時に起きる過程なので、共鳴的な過程である。実際、スペクトルからも明らかにように特定の電子エネルギーで起きている。(3)式の前半だけ見ると、これはオージェ過程(用語解説参照)の逆過程である。そのためDRの共鳴を指定するのにオージェ過程の場合の表示方法を借用してKLL, KLM...と書かれる。例えば、KLM共鳴は電子捕獲によりK殻電子が励起されL殻M殻の二電子励起状態ができ、そこから光を放出して安定化した場合をいう。ここで、K殻は $n=1$ 、L殻は $n=2$ 、M殻は $n=3$ の電子殻を指す。

図1には $n=2 \rightarrow 1$ と示されたX線エネルギーを一定としてKLL共鳴からKLM, KLNと続き、電子衝撃励起の閾

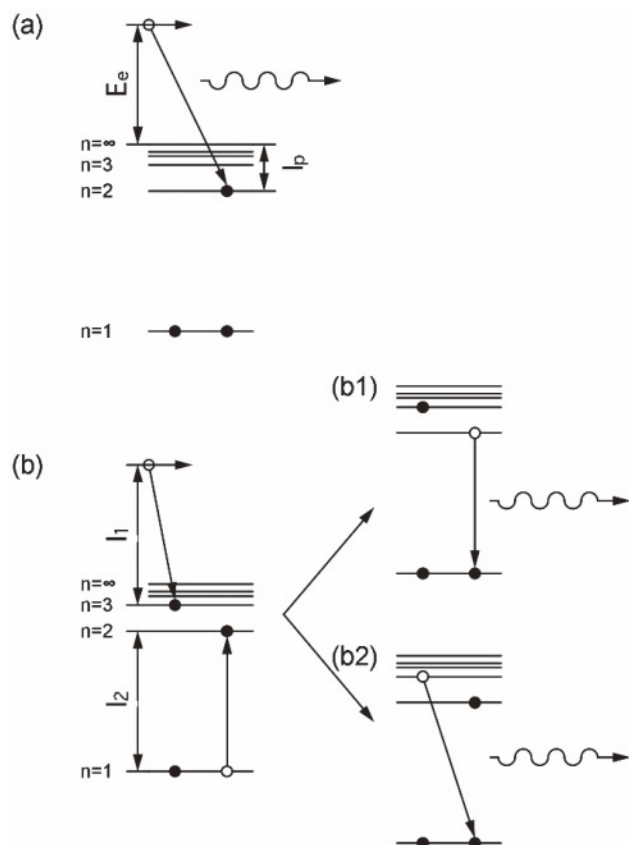
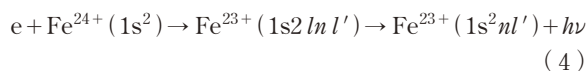
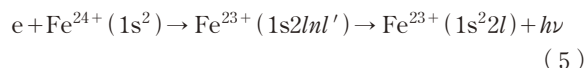


図2 放射性再結合(a)と二電子性再結合(b)の模式図。

電子エネルギー以上で電子衝撃励起により生じた $n=2$ からの遷移による連続状の X 線へと収束するピークが現れている。また、同様に $n=2$ の RR の X 線の帯の上に KLM, KLN と続く DR によるピークが現れている。前者は



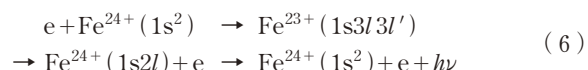
であり、 $n=2$ の電子が脱励起することにより放出された X 線である(図 2 (b1))。電子衝撃励起により生じた $n=2 \rightarrow 1$ 遷移による X 線とエネルギー的にはほぼ等しくなる。後者は



であり、高い励起状態にある側の電子が脱励起することにより放出された X 線である(図 2 (b2))。後者の終状態を見ると明らかのように、 $n=2$ への RR による終状態と同じであり、X 線エネルギーは DR と RR で等しくなる。

$n=2 \rightarrow 1$ 遷移による X 線に沿って見ると、ピークの高さは低電子エネルギー側から高電子エネルギー側に向かい急激に低くなり連続状の X 線へと収束している。つまり、電子衝撃励起により生成した状態からの X 線に比べ DR による X 線は非常に強いことがわかる。DR が提唱されたのは 1940 年代初めであるが[6]、DR は共鳴過程であり特定の電子エネルギーでのみ起こるため、このように非常に強い共鳴であるにもかかわらずプラズマに与える影響は限定的であると見なされ長い間注目されてこなかった。しかしながら、実際のプラズマでは電子のエネルギーは一定の分布をしており、電子温度が共鳴エネルギーから外れていたとしても共鳴エネルギーを持った電子が含まれている。プラズマ中での DR の重要性が認識されたのは 1960 年代の中頃[7]、実際に断面積等の物理量が粒子線交差実験で測定されるようになったのは 1980 年代初めである[8,9]。1990 年代以降、EBIT や電子冷却器を備えた重イオン蓄積リングの使用により、裸に近い多価イオンについても測定がなされるようになった[2-5, 10, 11]。

$n=2 \rightarrow 1$ 遷移による X 線に沿って高電子エネルギー側に見て行くと、電子衝撃励起により生成した励起状態からの遷移による X 線の上に共鳴構造が現れている。KMM, KMN と示してあるのがその共鳴構造であるが、これは DR による X 線ではなく共鳴励起(Resonant Excitation; RE)による遷移である。KMM と示されている遷移については



である。

DR について重イオン蓄積リングを用いて非常に綺麗なスペクトルが測定されているので紹介する。図 3 は Schippers らによって測定された重イオン蓄積リングを用いたリチウム様ニッケルイオンの DR の速度係数の測定結果である[3]。図 3 のスペクトルに現れているピークは

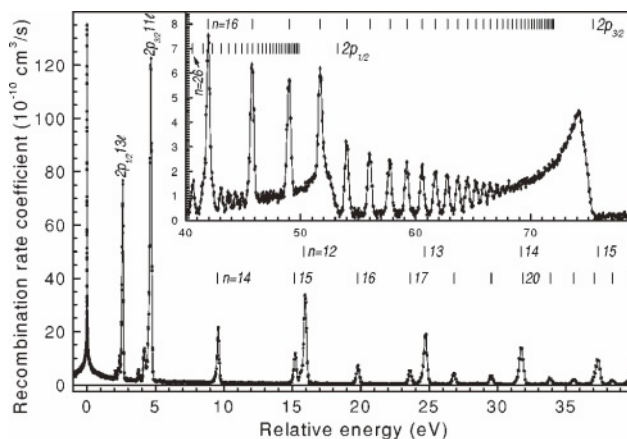
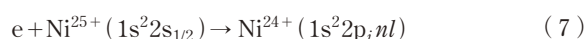


図 3 Schippers らによる重イオン蓄積リングを用いたリチウム様ニッケルイオンの $\Delta n=0$ DR のスペクトル[3]。

の $\Delta n=0$ の束縛電子の励起を伴う DR 過程である。電子捕獲の後、 $2p_j$ または nl の電子が遷移することにより光を放出して脱励起する。EBIT を用いた実験と異なり、測定では発光を測定するのではなく、再結合により電荷が変わりリングの周回軌道を外れたベリリウム様イオンをイオンに対する電子の衝突エネルギーに対して測定することにより DR のスペクトルを得ている。 $1s^22p_{1/2}nl$ と $1s^22p_{3/2}nl$ について、エネルギー的に $2s_{1/2} \rightarrow 2p_j$ が可能な $n=13$ と $n=11$ から始まって(例えば、 $1s^22p_{1/2}12l$ の場合は $12l$ 電子の電離エネルギーが $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ の励起エネルギーより大きくなるため電子捕獲により二電子励起状態ができない)、それぞれのシリーズリミットである $2s_{1/2} \rightarrow 2p_{1/2,3/2}$ の励起閾エネルギーに向かって共鳴が現れている。エネルギー分解能が非常に高いので $n=32$ の共鳴まで奇麗に分解して測定されている。このスペクトル中、0 eV のピークは RR による寄与であり、シリーズリミットの前で DR 速度係数が減衰しているのはリングの偏向磁石中の磁場の影響で再電離が起きてしまうためである。

2.1.3 多価イオンの電離過程

電子が多価イオンと衝突すると電子は散乱されるだけでなく、そのエネルギーの一部を用いてイオンを電離させる。プラズマ中の電荷分布は再結合過程と電離過程のバランスで決まっており、電離過程の役割は重要である。プラズマ中の電子に関わる電離過程には直接的な電離過程と間接的な電離過程が存在する。

直接的な電離過程は電子衝撃電離過程 (Electron Impact Ionization; EI) で

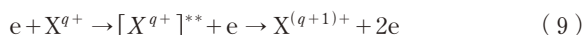


のように表すことができる。これは正に電子が束縛電子をはじき飛ばす過程であり、プラズマ中の主な電離過程である。

重元素の裸に近い多価イオンの EI 断面積の様相は軽元素や価数の低いイオンの場合と大きく異なる。例として水素様イオンを考えると、電離の閾エネルギーを I_H として $u = (E_e - I_H)/I_H$ とすると、軽元素の水素様イオンの EI の断

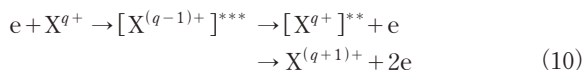
面積は一般に電離の閾値から u のほぼ 1 乗で立ち上がり、 I_H の 2, 3 倍で最大値を示し、 u が大きい極限で $A/u + B(\ln u)/u$ の依存性で小さくなる。ここで A, B は定数である。しかしながら、原子番号 Z が大きくなるに従い断面積に与える相対論的効果の影響が無視し得なくなり、 Z の増加とともに高エネルギー側での断面積の低下の度合いが緩やかになり、 $Z = 56$ 以上では電子エネルギーが大きくなるに従い断面積の値も大きくなる [12]。ここでいう相対論効果とは、標的電子波動関数の相対論的ローレンツ収縮や、情報が有限の速度（光速）で伝わるために生じる標的電子と入射電子の相互作用の遅延効果のことである [13]。Lotz の非相対論的な経験式 [14] を用いて求めた値と相対論的効果を考慮した計算結果を比較すると、水素様ウランで電子エネルギーが電離の閾エネルギーの 1.5 倍の場合、前者が $0.7 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ なのに対して後者は $1.40 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ [15] であり 2 倍も異なる。この断面積は EBIT を用い実際に測定されており相対論的効果を考慮に入れた計算結果は実験結果と良く一致している [16]。

間接電離過程は何らかの方法により多電子励起状態が生成し、その状態が自動電離により崩壊し、電子が放出される過程である。内殻電子が電子衝撃により励起され多電子励起状態ができ、それが崩壊し電子を放出する Excitation Autoionization (EA) と呼ばれる過程

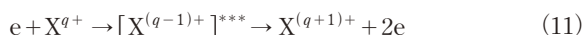


がある。この過程は多電子励起状態のエネルギー準位が電離の閾エネルギーよりも高い場合に起きる。

共鳴的な電子捕獲により生成した多電子励起状態を経由した過程で、多電子励起状態が 2 回の自動電離により崩壊する Resonant Excitation Double Autoionization (REDA) と呼ばれる過程



と 1 回で 2 つの電子を放出する Resonant Excitation Auto-Double Ionization (READI) と呼ばれる過程



がある。これらは既に説明した DR と同様、共鳴的に生成した多電子励起状態を経由するため、特定の電子エネルギーで起きる。

図 4 に Linkemann ら [17] が重イオン蓄積リングを用いて測定したナトリウム様鉄イオンの電離断面積の測定結果を間接電離過程の例として示す。重イオン蓄積リングを周回するナトリウム様イオンが電子冷却器の電子と相互作用することにより電離し、周回軌道から外れたネオン様イオンを測定することで断面積が求められた。黒丸が彼らの実験値である。断面積は 489 eV の EI の閾エネルギーから 710 eV の $n=2 \rightarrow 3$ の電子衝撃励起の閾エネルギーまで緩やかに増加している。これは EI による直接電離のみの寄与であり、Lotz の式 [14] による電子衝撃電離断面積の値と良く一致している。710 eV を超えると、内殻励起による多電子励

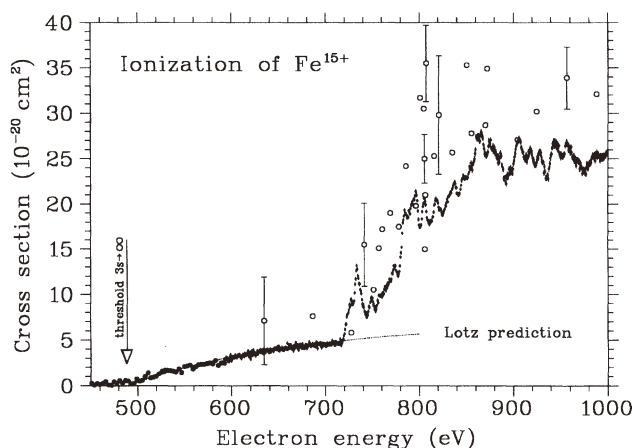


図 4 黒丸は Linkemann らによる重イオン蓄積リングを用いたナトリウム様鉄イオンの電離断面積の測定結果 [17]。EI に加え、EA や REDA による寄与が見られる。白丸は Gregory らによる測定結果 [18]。

起状態の生成が可能になるため EA が起きる。図 4 を見ると 710 eV より高エネルギー側で断面積は階段状に立ち上がっている。これは EA による寄与である。また、その領域にはピーク状の複雑な共鳴構造が現れているが、これは電子捕獲による多電子励起状態を経由した REDA による寄与である。EA と REDA により電離断面積は急激に大きくなり、直接電離のみを考慮した場合に比べ 5 倍程度に増加している。Linkemann らの結果からも明らかのように EA や REDA 等の間接電離過程は直接励起と重なって起きる。間接電離過程は直接電離に比べて小さいと思われがちであるが、直接電離の EI のみを考えると場合によっては電離の断面積が過小評価となるため注意が必要である。

2.1.4 終わりに

電子-多価イオン相互作用の基礎について、それ自体が物理学上の興味深い研究対象でもあるが、ここでは応用研究との関わりに主眼を置いて解説した。数個の束縛電子をもつ多価イオンの電子衝突過程についての研究は実験・理論ともに大いに進んでいる。しかし応用という観点からは、より多数の束縛電子をもつ重元素多価イオンの電子衝突過程に関する知見が不十分である。人工衛星を用いた太陽大気の研究や次世代半導体のリソグラフィ用光源開発では、重元素多価イオンの M 殻 ($n=3$) や N 殻 ($n=4$) が関与する励起・電離・再結合過程について正確な知見が必要とされている。磁場閉じ込め核融合プラズマの放射崩壊の研究でも同様のことがいえる。多くの電子配置をもつ多電子系では、電子間相互作用と相対論補正の効果が競合するので、エネルギー準位構造が大変複雑で、光放射や衝突による電子遷移が準位間で干渉して強め合ったり、あるいは弱め合ったりして複雑な挙動を示す。このような場合、理論予測の精度は一般に低い。また、実験的にも多電子系の場合には個々の電子衝突断面積を決定することは容易ではない。実験・理論ともに研究手法の工夫を凝らしてブレークスルーを期待したい。

参考文献

- [1] H.F. Beyer and V. P. Shevelko, *Atomic Physics with Heavy Ions* (Springer-Verlag, Berlin, 1999).
- [2] G. Kilgus *et al.*, Phys. Rev. Lett. **64**, 737 (1990).
- [3] S. Schippers *et al.*, Phys. Rev. A **62**, 022708 (2000).
- [4] C. Brandau *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 053201 (2002).
- [5] D.A. Knapp *et al.*, Phys. Rev. A **47**, 2039 (1993).
- [6] H.S.W. Massey and D.R. Bates, Rep. Prog. Phys. **9**, 62 (1942).
- [7] A. Burgess, Astrophys. J. **139**, 776 (1964).
- [8] J.B.A. Mitchell *et al.*, Phys. Rev. Lett. **50**, 335 (1983).
- [9] P.F. Dittner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **51**, 31 (1983).
- [10] H. Watanabe *et al.*, J. Phys B: At. Mol. Opt. Phys. **34**, 5095 (2001).
- [11] H. Watanabe *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 012702 (2007).
- [12] D.L. Moores and K. J. Reed, Nucl. Instrum. Methods B **98**, 122 (1995).
- [13] B.L. Moiseiwitsch, Adv. Atom. Mol. Phys. **16**, 281 (1980).
- [14] W. Lotz, Z. Phys. **220**, 466 (1969).
- [15] C.J. Fontes *et al.*, Phys. Rev. A **51**, R12 (1995).
- [16] R.E. Marrs *et al.*, Phys. Rev. Lett. **72**, 4082 (1994).
- [17] J. Linkemann *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 4173 (1995).
- [18] D.C. Gregory *et al.*, Phys. Rev. A **35**, 3256 (1987).