小特集 多価イオン原子過程の基礎と拡がる応用研究

4. 多価イオンの応用

高品質多価イオンビームの発生 4.4

池田時浩, 大島永康¹⁾

理化学研究所 原子物理研究室, 1)産業技術総合研究所 計測フロンティア研究部門

(原稿受付:2007年4月27日)

多価イオンビームを電子冷却と陽電子冷却の両方を用いて減速する「電子・陽電子冷却法」が開発されつつ ある.まず高密度電子プラズマによって~1 eV/q まで冷却し,その後,陽電子プラズマによって環境温度まで冷 却するものである.一方,多価イオンをナノビーム化する方法として「キャピラリー集束法」を開発した.細胞 電位測定や細胞への注射に用いられるガラス製の注射針を加工してビーム光学素子として使用することで、ビー ムのナノサイズ化だけでなく、粒子密度をも上げ、さらに、角度にして数度程のビーム偏向に成功している.こ れらの方法により、多価イオンビームをエネルギーとサイズに関して高品質化することで、より広範な分野への 多価イオンビーム応用が可能になる.

Keywords:

electron cooling, positron cooling, electron plasma, positron plasma, cold ion, glass capillary, nanobeam, insulator, focusing effect, guiding effect

4.4.1 はじめに

低エネルギーかつ高エネルギー分解能の多価イオンビー ムを効率よく生成するために,あるいはトラップ中で速度 の遅い多価イオンを用いて各種の高精度分光を可能にする ために,多価イオンの冷却(減速)技術の開発は重要であ る. また, 多価イオンビームを4.3節「ナノテクノロジーへ の応用」で扱われているような照射に用いるためには, ビームをナノサイズ化し,かつ,粒子密度を上げる方法を 開発することも重要である.このように、冷却およびナノ ビーム化の技術は、多価イオンビームの高品質化、さらに は,多価イオンの応用分野拡大に直接貢献するものと位置 づけ、筆者らのグループでは高品質化技術を開発してき た.この節の前半では、エネルギーを下げる手法として「電 子・陽電子冷却法」を、また後半では、ビーム径を縮小す る方法として「キャピラリー集束法」を紹介する.

4.4.2 電子·陽電子冷却法

EBIS や ECRIS (3章を参照)等で生成される価数 q の多 価イオンのエネルギー幅(温度)は10~100 eV/g であるた め[1-5]、多価イオンの利用可能な最低エネルギーも同程 度になると考えられる.より低いエネルギー領域で多価イ オンの利用を可能にするために、多価イオンを冷却(減速) する手法(蒸発冷却法・抵抗冷却法・電子冷却法・あるい はそれらの複合的手法等)が複数のグループにより研究さ れている[1-3,5-12]. 多価イオンを冷却せずに、エネル ギー分布の一部を切り出すことによりエネルギー幅~1 eV /q 程度の高分解能ビームを生成することも可能である[13 -15]. なお,冷たい多価イオンは,ビームの低エネルギー 化,高エネルギー分解能化[10]だけでなく、トラップ内で の質量分析・レーザー分光・g因子測定の高精度化等 [6,7,16-18]への利用が期待されている. ここでは筆者ら が開発中の「電子・陽電子冷却法」と呼ばれる多価イオン 冷却法について紹介する[19]. この手法は、多価イオンを 電磁トラップ中に捕獲し、そこで電子冷却法と陽電子冷却 法とを同時に適用して環境温度(0.1 eV/q 以下)にまで冷 却するために考案されたものである.先にあげたいくつか の多価イオン冷却法は、それぞれ異なる特長を持つ[7]. そ れらと比較した電子・陽電子冷却法の利点は、冷却速度が 速く,また冷却中のイオン損失が少ないことだといえる.

高温のイオンを低温の電子群(電子プラズマ)中に放り 込み、クーロン散乱を通してイオンの熱を電子プラズマに 移行させる冷却手法は電子冷却法と呼ばれる. 軽粒子であ る電子は、磁束密度 B [T]の中ではシンクロトロン放射に より時定数~4/B²秒で環境温度にまで冷却されるため,磁 場が十分に強ければイオンから電子に移行した熱もすぐさ ま外界に放射して低温を維持することができる. したがっ て、通常、電子冷却はテスラレベルの磁場を用いる電磁ト ラップ中で行われる.また,原理的には、冷却電子数(電子 密度)を増やすことで、イオン冷却時間をどこまでも短くす ることができる.電子の代わりに陽電子を冷却材として用 いる場合には、陽電子冷却法と呼ぶ、電子(陽電子)冷却法 は、既に反陽子の冷却でその有用性が実証されており

4. Application of Highly Charged Ions 4.4 Production of High-Quality Beam of Highly Charged Ions IKEDA Tokihiro and OSHIMA Nagayasu

authors' e-mail: tokihiro@riken.go.jp, nagayasu-oshima@aist.go.jp

[20,21],例えば10⁴ eVの反陽子は電磁トラップ中で電子 冷却により1 eV以下にまで冷却された後,10 eV 程度の ビームとして利用されている[22].なお,冷却材である電 子と陽電子は,それぞれ10¹⁰個と10⁸個を電磁トラップ中の 体積~0.1 cm⁻³程度に捕獲することが可能である[21,23].

多価イオンを電子冷却法により冷却する場合、冷却電子 との再結合(放射性再結合過程と三体再結合過程)による イオンの損失が危惧される[24].例えば, GSIでは 10 keV/qのU⁹²⁺(10⁵個)を電磁トラップ内に捕獲して冷 却する計画が進行中であるが[8,9,11],この冷却を10¹⁰個 の電子 (密度10¹¹ cm⁻³) で行う場合を考えてみる. 筆者ら の計算によれば、U⁹²⁺を電子プラズマ内で~1 eV/q程度に まで冷却すると~10%程度が再結合により失われてしま う. さらに冷却が進むと損失の割合は急激に大きくなるた め,実質,環境温度までの冷却は不可能だと結論できる [19]. 陽電子冷却法を適用すれば、電子再結合の問題をな くすことは可能であるが、陽電子の蓄積量は、先に述べた ように電子のそれに比べて2桁ほど少ないために[21,23], 冷却の速度も同程度の比で遅くなってしまう. 多価イオン の冷却速度が遅いと、利用できる低温イオンの供給サイク ルが遅くなるだけでなく、残留ガスとの衝突(荷電変換)に より失われる確率も大きくなるために二重に都合が悪い. 多価イオンの残留ガスとの衝突による電荷移行断面積はこ こで問題にしているエネルギー領域ではほぼ一定で10-14 ~10⁻¹³cm²と非常に大きい[25].したがって、荷電変換を 起こすレートは、おおよそイオン速度(衝突頻度)に比例 する. U⁹²⁺(10 keV/q)を,極高真空下(10⁻¹⁰ Pa,残留水 素分子密度~10⁵ cm⁻³) にある電磁トラップに単に捕獲し た場合は、荷電変換を起こす速度はおおよそ1s⁻¹となるた め、~1秒に比べて短い時間で冷却を行う必要がある.10⁸ 個の陽電子(密度 10⁹ cm⁻³)を用いて冷却する場合には,環 境温度にまで冷却されるのに~1秒を必要とするため、冷 却中のイオン速度の低下を考慮しても荷電変換により無視 できない割合(~20%程度)で価数が変わってしまう.

電子・陽電子冷却法では、電子冷却と陽電子冷却の両方 を同時に適用することにより、それぞれが持つ欠点を補 い、また、それぞれが持つ利点を生かすことが可能となる. まず高密度の電子プラズマによって、多価イオンを短時間 に~1 eV/q 程度まで冷却し、残留ガスとの電荷移行反応に よるイオン損失を小さくする.その後、環境温度までの冷 却は陽電子プラズマによって行うので、電子再結合による イオン損失の心配からは解放される.実験的には、電子・ 陽電子冷却法は、冷却後のイオンビーム引き出しも含めて 次のような手順で行う(図1).電磁トラップ(多電極ト ラップ, Multi-Ring electrode Trap, MRT)の入口電極の 電位スイッチを開閉して、多価イオンを MRT 内に捕獲す る.なお、MRT は、荷電粒子を軸方向には電場で、径方向 には磁場で閉じ込める[26].多価イオンは、あらかじめ閉 じ込めておいた冷たい電子・陽電子との衝突を繰り返しな



(b) Extraction of Cold HCIs



図1 (a)多価イオンの電子・陽電子冷却の模式図.実線は、 MRT中の電位プロファイルを示す.多価イオンは、あらかじめ閉じ込めておいた冷たい電子・陽電子との衝突を繰り返しながら、まずは急速に電子プラズマ電位にまでエネルギーを失い、その後電位の最も低いところである陽電子プラズマ電位にまで到達し、最終的に環境温度にまで冷却される.(b)低温多価イオンビームの引き出しの模式図[19].閉じ込めポテンシャル壁を短時間開くことにより、陽電子と多価イオンを分離する.多価イオンから分離した陽電子は、次の冷却サイクルにて再利用される.多価イオンは、閉じ込めポテンシャルの底電位を持ち上げることによりビームライン下流側にこぼし出し、極低温ビームとして利用する.

がら、まずは急速に電子プラズマ電位にまでエネルギーを 失い、その後電位の最も低いところである陽電子プラズマ 電位にまで到達し、最終的に環境温度にまで冷却される (図1(a)).多価イオンのみをビームとしてMRTから引き 出すために、多価イオンと陽電子をMRT内で分離する必 要がある.多価イオンと陽電子の熱速度は大きく異なるの で、閉じ込めポテンシャル壁を短時間開くことにより陽電 子のみがそこを通り抜けることができる結果、陽電子と多 価イオンを分離することができる.多価イオンから分離し た陽電子は、次の冷却サイクルにて再利用される(注1). 多価イオンは、閉じ込めポテンシャルの底電位を持ち上げ ることによりビームライン下流側にこぼし出し、極低温 ビームとして利用する(図1(b)).MRT内に捕獲する電子

(注1) 陽電子源には市販されている放射性同位元素(²²Na 100 mCi) がよく用いられるが,この場合,陽電子10⁸個を蓄積するのに 1分程度必要とする.したがって,多価イオンの冷却サイクルを効率よく繰り返すためには,一度蓄積した陽電子を MRT から失わ ないことが重要である.なお,10¹⁰個の電子は~1秒で蓄積できる.

と陽電子の数 (密度) をそれぞれ10¹⁰個 (10¹¹ cm⁻³)と10⁸個 (10⁹ cm⁻³)とすると、すぐ後に示す計算結果からもわかる ように U⁹²⁺ (10 keV/q, 10⁵個) を~1 秒より十分速く冷却 することができ、電荷移行反応による損失は無視できる. なお,環境温度(0.1 eV/q)にまで冷却された U⁹²⁺は,荷電 変換で決まる寿命は10秒以上となる.図2に、2成分プラ ズマ混合モデル[27]によって計算された U⁹²⁺(10 keV/q, 105個)の冷却の様子を示す。縦軸は陽電子プラズマ電位を 基準とした時のイオンエネルギーを、横軸は冷却時間を表 す. 実線部分は10 keV/qから10 eV/qまでの電子冷却に相 当し, 点線部分は 10 eV/q から環境温度までの陽電子冷却 に相当する.なお,計算では,環境温度を0.1 eVとして,電 子プラズマ電位が陽電子プラズマ電位に比べて10V高い とした. 10 keV/qのU⁹²⁺(10⁵個)が電子・陽電子冷却によ り数十ミリ秒のスケールで0.1 eV/q 近くにまで冷却される ことがわかる.

電子・陽電子冷却法は,高密度の電子プラズマにより~ 1 eV/q 程度まで短時間に冷却し,その後,陽電子プラズマ により環境温度にまで完全に冷却する手法である.この冷 却法の開発状況であるが,MRT内に冷却材である電子プ ラズマと陽電子プラズマを捕獲し[23],多価イオンの電子 冷却まで成功している[28].電子冷却後の多価イオンをさ らに陽電子冷却する研究が現在進行中である.

4.4.3 キャピラリー集束法

多価イオンはその反応性の高さを利用して, keV 領域以 下の運動エネルギーでは,物質表面を改質したり,表面の 原子・分子をスパッタリングさせることで微量分析をした りするなど応用的研究も進んでおり,さらに微細な領域に 選択的に照射するためにナノビームへの要求が高まってい



図 2 電子・陽電子冷却法による多価イオンU⁹²⁺エネルギーの時間発展(計算値).縦軸は陽電子プラズマ電位を基準とした時のイオンエネルギーを、横軸は冷却時間を表す.U⁹²⁺の数は10⁵個,初期エネルギーを10keV/q,電子数(密度)と陽電子数(密度)をそれぞれ10¹⁰個(10¹¹ cm⁻³)と10⁸個(10⁹ cm⁻³),環境温度を0.1 eV と仮定した.実線部分は10 keV/q から10 eV/q までの電子冷却に相当し、点線部分は10 eV/q から環境温度までの陽電子冷却に相当する.なお、電子プラズマ電位が陽電子プラズマ電位に比べて10 V高いとした.

る. ビーム径を小さくするためにコリメータを用いる場合 は、強度が著しく下がるだけでなくコリメータ内壁表面で の荷電変換やエネルギー損失が問題になる. また, 併用し て静電レンズを使う場合はエミッタンスが良いことが要求 される. そこで、筆者らはビームをナノサイズ化してなお かつ粒子密度をも向上させる方法として、ガラスキャピラ リー内壁表面の自己組織化帯電現象を利用したビーム集束 法の開発を進めている[29,30]. このガラスキャピラリー は細胞電位測定や細胞への注射に用いられるガラス製の注 射針を加工したものである.これまで用いたガラス管は外 径2 mm
ø, 内径 0.8 mm
ø のボロシリケイトで, 入口内径は 0.8 mm のままで、出口内径は数十 nm ~ 数十 µm ん に絞っ てある. 図3(a)にその集束原理を示す. キャピラリー内 壁が帯電していない状態で、照射開始直後に入射したイオ ンは内壁に衝突することで停止してしまうが、そのイオンの 電荷により内壁表面は次第に帯電する(図3(a-1)).帯電 が十分になると次に同じ場所に来たイオンは、帯電による



図3 (a)内壁表面の自己組織化帯電現象による集束原理の模式
 図[29] (b) 真空槽内のガラスキャピラリーと検出器のセットアップ[29] (c)使用したガラスキャピラリーの写真[29] (d) 通過イオンビーム強度の時間変化(8 keV Ar⁸⁺ビーム(約 0.2 pA)):ピークでのビーム密度は入射時の密度より約10倍大きく、収束効果を有することが確認された[29].

ポテンシャルで内壁に近づくことができず,前方に散乱さ れ、出口の内径が入口より小さければビームは収束し、結 果的に出射ビーム径は出口径にほぼ等しいと考えられる (図3(a-2)). また,内壁での反射に対して,必ずしも内壁 とビームの間の角度を厳密には要求していないことから, ビーム軸とキャピラリー軸が完全には一致していなくても ビーム通過が起こる(ガイド効果).ここで、ポテンシャル を利用してビームを輸送するには、多くの場合、人為的に ポテンシャルを生成および操作する必要がある. その意味 で、ここで扱う自己組織化された帯電では、ビーム自身に よる表面の帯電部分が時間を追うごとに、あたかも自ら ビームを特定の方向にガイドしていくかのように帯電分布 が形成されていくという特長がある.一方、もっと運動エ ネルギーが高い,数 MeV の He²⁺ビーム(数 nA 入射)で は、異なる結果が得られており、ここでは詳細は扱わない が、以下に実験結果の相違点をあげておくと、keV 領域の ビームでは通過してくるまでに数秒から数十秒の自己組織 化形成時間が観測されていることに対し, MeV領域のビー ムではビーム入射とほぼ同時にビームの通過が観測されて いる. また、キャピラリー軸方向がビーム軸方向とずれた 場合, keV 領域のビームではガイド効果が起こるが, MeV 領域のビームではほとんど見られない.

4.4.4 keV領域多価イオンビームの通過実験と収 束効果

理化学研究所での実験の例を示す. 多価イオン源はカプ リスタイプの14.5 GHz Electron Cyclotron Resonance (ECR)イオン源である. ガラスキャピラリーが収められた 真空槽内 (~10⁻⁵Pa) のセットアップを図3(b)に示す.8 keVに加速されたAr⁸⁺ビームは2mm f のコリメータを通 過後, ガラスキャピラリーに入射される. ここでのビーム 拡がりは、±3.3 mrad 以下である.長さが約 50 mm (図 3 (c-1))のキャピラリーの入口は、外径2mm¢,内径0.8 mmφ であり、出口内径は 24 μm である (図 3 (c-2)). 比重 は2.23で、1µm厚程度以上のキャピラリー壁があれば、エ ネルギーが数十keV以下の多価イオンビームが壁に斜め入 射しても、ガイドされずに壁を貫通してしまうようなこと はない. キャピラリー出口と Position Sensitive Detector (PSD)の間にはディフレクターを設置し、価数分布を測定 している. ガラスキャピラリーの入口は、帯電を防ぐため アルミフォイルで被われ、キャピラリー入口内径と同じ0.8 mmø の穴が空けられている. さらに, これに外径 6 mmø のツバをつけることで、ガラスキャピラリーの脇から直接 イオンが下流の PSD に届くことを防いでいる.また,こ のフォイルは入口への入射電流をモニターすることにも使 われている.

図3(d)にAr⁸⁺ビーム(約0.2ピコアンペア)がキャピラ リー入口に入射されたときの通過イオンビーム強度の時間 変化を示す. 横軸はビームがキャピラリーに入射され始め た時刻をゼロとしており,縦軸はPSDでの1秒あたりのカ ウント数で,入射ビーム強度の揺らぎは10%以内であっ た.最初の約40秒間に適切な帯電分布が形成されたと考え られる. 図の通過イオン数の最大値は 1600 cps で,出口面 積は入口面積に対して約10⁻³,その一方で,出射粒子数は 入射粒子数 (1.6×10^5 個/秒)に対して約10⁻²であるので, 密度は約10倍 (以下, Enhancement Factor (E.F.) = 10と呼 ぶ)大きくなったことがわかる. これにより,収束効果を 有することが確認された.

4.4.5 ガイド効果と荷電変換

キャピラリー内壁でイオンが反射されるのであれば, キャピラリー入口を中心に水平または垂直にキャピラリー 本体を少し回転させてもビームは通過するはずである.図 4(a)内右下のインセットに,キャピラリーを-5°(= -87 mrad)から+5°まで1°ステップで水平回転させた 時のPSD上の通過ビームのプロファイルを示す.回転角度 に応じて左から右へスポットの移動が確認された.図4 (a)のグラフは横軸がキャピラリーを回転させた角度で, 縦軸はPSD上でのスポット位置を回転角度に変換したも のである.y=xの直線に沿っていることから,キャピラ リーの軸の方向に出射していることがわかる.ここで,横 軸および縦軸それぞれの誤差は,キャピラリー回転角の読 み取り誤差とスポットサイズ(半値全幅)に対応している.

図4(b-1)はディフレクターに電圧が印加されていない 時の通過イオンの2次元像で,図4(b-2)は印加した時の 像である.また,図4(b-3)はそれらを水平軸に対して射 影した図で,Arのゼロ価から8価までの対応するスポッ ト位置をスケールで示した.その結果,8価以外のピーク は見られず,全価数に相当する領域に到着したイオンのう ち,8価以外に相当する位置に到着したイオンの数はバッ クグラウンドも含め1%以下であった.仮にキャピラリー 内での反射の際に内壁に触れたとすると,このエネルギー のAr^{&+}イオンではそこで荷電変換が起こり,より低い価 数に変化してしまう.入射したAr^{&+}の価数が変わらな かったことから,通過してきたAr^{&+}ビームはキャピラ リー内壁には接触していないと考えられる.

4.4.6 ナノビームによる微小領域照射に向けて

出口内径で900,500 nm¢ のキャピラリーも作製した [30].内径900 nm¢ のキャピラリーでは Ar⁸⁺を 64 keV に加速して通過実験を行い,EF.は約7を得,出射ビーム の角度拡がりでは±2 mrad(垂直),±3 mrad(水平)であっ た.また,500 nm¢ の出口内径は集束イオンビーム(FIB) 装置によって作製し,照射実験に使用される予定である. ナノビーム(マイクロビームも含めて)を利用するには,ど こに照射されるかが予めわかっていることが重要である が,キャピラリー出口,すなわちビーム出射口位置が容易 に確認できるというのは大きなメリットである.また, キャピラリー出口直後にターゲットを設置する必要がある が,サンプル付近に電場も磁場も不要であるというのも利 点である.さらに,1~2°程度のガイド(本研究では最大 5°)ができることもナノビームを微小領域に照射するとい う応用に対しては都合が良い.



図4 (a) キャピラリーの回転角とビームの偏向角の関係[29](b) Ar の8価イオンを入射した時の下流の PSD 上での2次元および1次元の通過イオンビームのプロファイル:8価以外のピークは見られなかった.荷電変換していないことを示しており通過してきたビームはキャピラリー内壁には接触していないと考えられる[29].

4.4.7 おわりに

本研究を進めるに当たって、ビーム冷却に関しては、山 崎泰規氏,毛利明博氏,小島隆夫氏,新垣恵氏,およびキャ ピラリーでの多価イオンビーム集束に関しては、山崎泰規 氏,金井保之氏,小島隆夫氏,岩井良夫氏が共同研究者で ある.本研究は理化学研究所 基礎科学研究 "エキゾ ティック量子ビーム研究"により、さらに、キャピラリー 集束では、文部科学省科学研究費補助金(萌芽研究 17654079)の援助も受けて進められた.

参考文献

- [1] J. Dilling et al., Int. J. Mass Spectrometry 251, 198 (2006).
- [2] L. Ryjkov et al., Eur. Phys. J. A 25, s01, 53 (2005).
- [3] D. Habs et al., Eur. Phys. J. A 25, s01, 57 (2005).
- [4] T.A. Antaya *et al.*, J.D. Phys. Colloque C1, T50, C1-707 (1989).
- [5] B.M. Penetrante et al., Phys. Rev. A 43, 4873 (1991).
- [6] L. Gruber et al., Phys. Rev. Lett 86, 636 (2001).
- [7] L. Gruber, 'Cooling of Highly Charged Ions in a Penning Trap', Lawrence Livermore National Laboratory (2000).
- [8] T. Beier et al., Nucl. Instrum. Methods B 235, 473 (2005).
- [9] W. Quint et al., Hyperfine Interract. 132, 457 (2001).
- [10] N. Oshima et al., Nucl. Instrum. Methods B 205, 178 (2003).
- [11] J. Bernard et al., Nucl. Instrum. Methods A 532, 224 (2004).
- [12] T. Kinugawa *et al.*, Physica Scripta. T92, 102 (2001).

- [13] N. Stolterfoht, AIP Conf. Proc. 500, 646 (2000).
- [14] S. Ohtani et al., J. Pjys. B: At. Mol. 15, L533 (1982).
- [15] K. Okuno, Jpn. J. Appl. Phys. 28, 1124 (1989).
- [16] V.M. Shabaev *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 253002 (2006).
- [17] G. Werth et al., Int. J. Mass. Spectrometry 251, 162 (2006).
- [18] D.F.A. Winters *et al.*, Nucl. Instrum. Methods B 235, 201 (2005).
- [19] N. Oshima et al., Nucl. Instrum. Methods B 235, 504 (2005).
- [20] G. Gabrielse et al., Phys. Rev. Lett. 63, 1360 (1989).
- [21] A. Mohri et al., J. Plasma Fusion Res. 80, 1005 (2004) [in Japanese].
- [22] N. Kuroda et al., Phys. Rev. Lett. 94, 023401 (2005).
- [23] N. Oshima et al., Phys. Rev. Lett. 93, 195001 (2004).
- [24] Y. Hahn, Rep. Prog. Phys. 60, 691 (1997).
- [25] R.E. Olson and A. Salop, Phys. Rev. A 14, 579 (1976).
- [26] A. Mohri et al., Jpn. J. Appl. Phys. 37, 664 (1998).
- [27] L. Spitzer, *Physics of Fully Ionized Gases* (Interscience Publishers, New York, 1962).
- [28] N. Oshima *et al.*, HCI2004 "Co-cooling scheme of highly charged ions with positrons and electrons", 2004, September, Vilnius, Lithuania.
- [29] T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, M. Hoshino, T. Nebiki, T. Narusawa and Y. Yamazaki, Appl. Phys. Lett. 89, 163502 (2006).
- [30] T. Ikeda, Y. Kanai, T.M. Kojima, Y. Iwai and Y. Yamazaki, Radiation Chemistry 83, 21 (2007) [*in Japanese*].