

小特集 多価イオン原子過程の基礎と拡がる応用研究

3. 多価イオン生成の方法

坂上 裕之, 中村 信行¹⁾

核融合科学研究所, ¹⁾電気通信大学

(原稿受付: 2007年6月1日)

多価イオンを生成するには大きなエネルギーが必要であるため, 地上のような低温環境には多価イオンは存在しない. したがって, 多価イオンを実験室で研究するためには何らかの方法で生成しなければならない. 1970年代頃から始まった多価イオン生成に関する技術開発はこれまでに目覚ましい発展を遂げ, 現在では任意の元素の任意の電荷状態を自由に手にすることができるといっても過言ではない. 本章では, そのような多価イオン生成技術の最先端を紹介する.

Keywords:

highly charged ion, ECRIS, EBIS, EBIT, heavy-ion accelerator

3.1 はじめに

水素原子に束縛されている電子を電離するためには, 周知のとおり 13.6 eV のエネルギーを与えなければならない. このエネルギーを電離エネルギーと呼ぶ. では, 重元素の水素様イオンの電離エネルギーはいくらだろうか. 同じ1電子系であっても, その電離エネルギーは原子番号 Z のおおよそ2乗に比例して大きくなり, $Z=92$ の水素様ウラン U^{91+} の場合, その値は約 130 keV にもなる. このように, 多価イオンを生成するには原子番号および電離状態に伴って大きくなる電離エネルギーを与えなければならない. これは一般には容易な技術ではないが, 多価イオン研究の重要性が認識されるようになるにつれ, この30~40年ほどで急速に発展してきた. 本章ではそれらの技術のうち, 主に他章の内容に関連する生成方法について紹介する.

3.2 電荷剥ぎ取り反応

イオンを十分に加速した後に炭素などの薄膜を通過させると, 多数の電子が剥ぎ取られ多価イオンとなる. この電荷剥ぎ取り反応においては, 薄膜への入射エネルギーが生成される多価イオンの価数を決める重要なパラメータの一つであるが, 一般に数 MeV/u~数百 MeV/u のエネルギーが必要であるため, 大規模なイオン加速器が必要となる. 加速器には, コッククロフト・ワルトン型やバン・デ・グラフ型のような静電加速器や, 高周波電圧で繰り返し加速を行う線形加速器(リニアックとも呼ばれる)や円形加速器(サイクロトロンやシンクロトロン)などがあるが, 多くの場合それらの組合せにより効率よく必要とされるエネルギーまで加速が行われる. 例として, ドイツ・重イオン科学研究所(GSI)の加速器施設(図1[1])におけるウラ

ンの裸イオン(全ての電子を剥ぎ取られたイオン)生成過程について考える. 図にあるように, GSIの加速器施設は加速器入射用イオン源(図中 Ion sources), 二段の線形加速器(同 UNILAC), シンクロトロン加速器(同 SIS) から成り, その間にガスや薄膜による電荷剥ぎ取り装置が設置されている. まず, 入射イオン源で生成した低価数の U イオンは, 線形加速器により十数 MeV/u 程度まで加速される. 加速されたウランイオンは薄膜に入射され, 電荷剥ぎ取り反応で70+程度まで電離された後にシンクロトロン加速器に入射される. 入射されたウランイオンは, 更に数 100~1000 MeV/u 程度まで加速され, 再び薄膜に入射させることにより, 最終的にウランの裸を生成することができる. 入射エネルギーが 400 MeV/u の場合には裸ウランと水素様ウランの生成率はともに40%程度であるが, 入射エネルギーの上昇とともに裸ウランの生成比が上昇し, 1000 MeV/u 程度になると水素様ウランが約 20% であるのに対して, 裸ウランが約 80% にも到達する[2].

GSIを始めいくつかの加速器施設では, イオン蓄積リング(GSIの例では図1中の ESR がそれに当たる)を加速器に併設し, 生成した高速イオンを長時間周回させ原子核や原子物理などの実験に使用している. 通常このような蓄積リングでは, 蓄積時間を向上させるために, 冷えた(運動量拡がりの小さい)電子ビームとイオンとの合流領域を設け, 電子とのクーロン相互作用によりイオンを冷却する(運動量拡がりを小さくする)ことを行っている. 通常の蓄積運転では, 電子とイオンとの相対速度がほぼゼロになるように電子エネルギーが調整されるが, 相対速度(エネルギー)を適宜走査すると, 再結合などの電子-多価イオン衝突過程を調べる格好の装置となる. 電子冷却により, 蓄積される多価イオンビームはエネルギーの揃った高輝度高

3. Production of Highly Charged Ions

SAKAUE Hiroyuki A. and NAKAMURA Nobuyuki

authors' e-mail: sakaue@nifs.ac.jp, n_nakamu@ils.uec.ac.jp

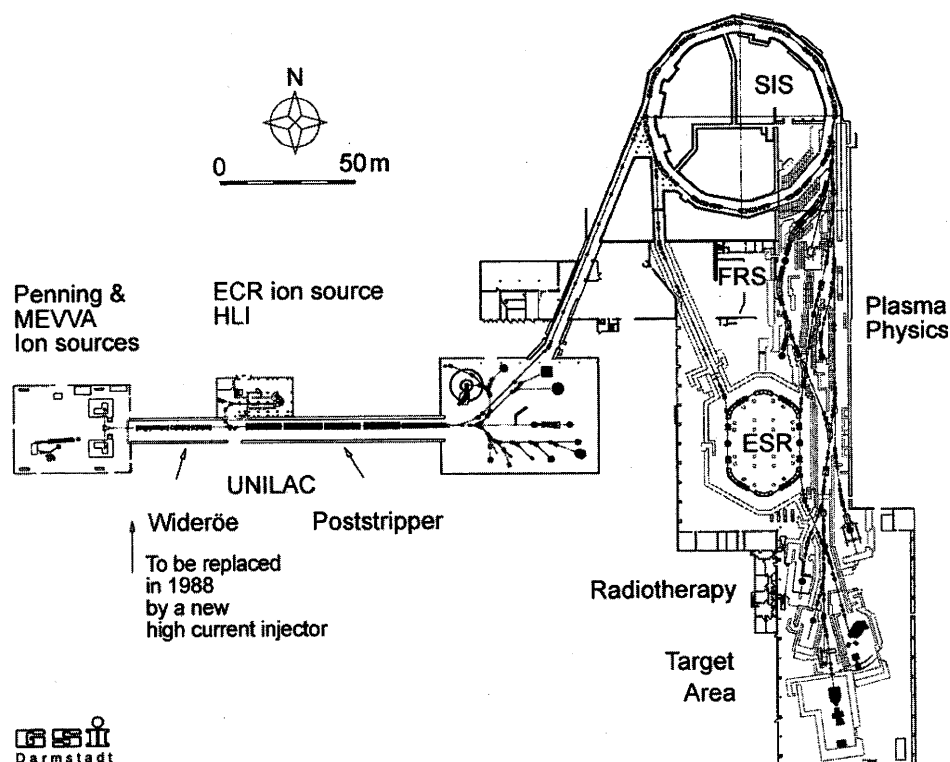


図1 ドイツ・重イオン科学研究所(GSI)の加速器施設[1].

品質ビームとなることから、他に類を見ないほどの高分解能・高感度での測定が可能であり、電離や再結合に現れる共鳴過程の観測に関して多くの重要な成果を残している(その一例が2.1節に紹介されている)。これまでそのような実験は比較的低いエネルギー領域($<1\text{ keV}$)においてのみ盛んに行われてきた。それは、電子とイオンとの相対速度が大きくなると、電子冷却器としての機能が失われイオンが発散してしまうためである。高エネルギー領域の実験を可能とするためには、電子冷却以外の方法でイオン冷却を行う必要があるが、最近 GSI では、確率冷却[3]によるイオン冷却を行うことで、水素様 U^{91+} の KLL 二電子性再結合など高エネルギー領域の測定も行っている[4]。

3.3 低速多価イオン源

ここで紹介する低速多価イオン源とは、高エネルギー衝突で一度に多くの電子を剥ぎ取るものではなく、イオンを何らかの方法で閉じ込め、電子衝撃により徐々に電離を進める(これを逐次電離と呼ぶ)ものである。前述の電荷剥ぎ取り反応による多価イオン化では核子当たり数 MeV～数百 MeV という膨大なエネルギーが必要であったが、電子衝撃による逐次電離ではそれほど高いエネルギーは必要としない。具体的には、ウランの $1s$ 電子の電離エネルギーが 130 keV 程度であるから、原理的にはその程度のエネルギーの電子衝撃で裸ウランを生成することが可能である。裸ウランまでとはいかずとも、数十 keV 程度の電子エネルギーがあれば、あらゆる元素をヘリウム様イオン程度にまで電離することが可能である。したがって、装置の規模は前述の加速器に比べて桁違いに小さくなる。

現在、低速多価イオン源と呼ばれるものには、ペニング

イオンゲージ (PIG)、レーザーイオン源、電子サイクロトロン共鳴イオン源 (ECRIS)、電子ビームイオン源 (EBIS) などが存在するが、ここではそれらの中でも広く使用されている ECRIS と EBIS について簡単に紹介する。ECRIS は中程度の価数の多価イオンを大電流で引き出せることが特徴であり、一方の EBIS は電流は少ないが裸までの高電離イオンを引き出せることが特徴である。なお、電子ビームイオントラップ (EBIT) と呼ばれるものは EBIS と原理的に同等なものであり、以降特に区別する必要がない場合は EBIS(T) と表記する。

3.3.1 電子サイクロトロン共鳴イオン源 (ECRIS)

ECRIS はグルノーブル核融合研究所の Geller ら[5] によって開発されたイオン源で、ミラー磁場と多極磁場(六極磁場など)を重ねることにより形成される極小磁場配位のもとでプラズマを長時間閉じ込め、マイクロ波によるサイクロトロン共鳴で加熱された電子との衝突により、逐次電離を進めるイオン源である。図2にその原理図を示す。マイクロ波のキャビティとしての役割も果たしている真空容器の前後にはミラー磁場形成のためのソレノイドコイルが配置される一方、多極磁石は真空容器に沿うように配置されている。電子加熱のためのマイクロ波とプラズマの種となるガスは真空容器後方から導入される。

逐次電離を利用するイオン源では、イオン閉じ込め時間と電子密度を向上させることが重要であるが、そのために ECRIS では、(1)磁場の強度およびミラー比(極大磁場と極小磁場の比)、(2)マイクロ波の周波数、の2つが重要なパラメータとなっている。性能向上のためにはこれらを増加させる必要があるが、それぞれを独立に考えることはできず、通常は双方を同時に増加させることが必要となる。高

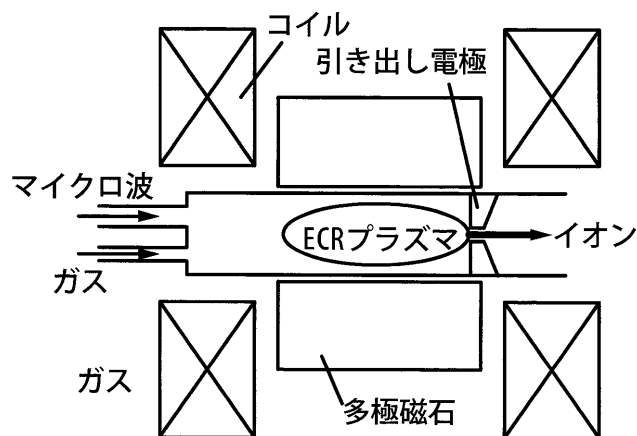


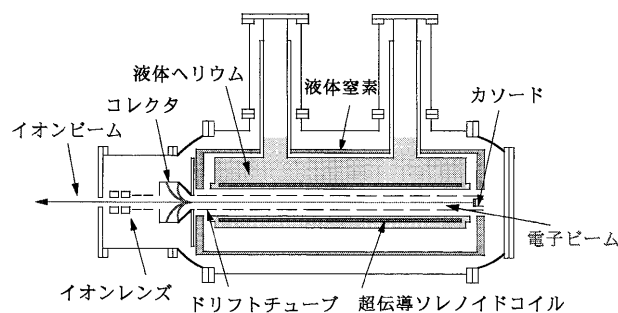
図2 電子サイクロトロン共鳴イオン源(ECRIS)の模式図。

磁場発生のために超伝導磁石を用いた ECR イオン源もいくつか製作されている。日本では筑波大学[6]と理化学研究所[7]において液体ヘリウムの供給を必要としない超伝導 ECRIS が稼働中である。SHIVA と呼ばれる筑波大学の超伝導 ECRIS では、最大 3 T の磁場により、 Xe^{35+} など非常に価数の高いイオンの生成にも成功している。

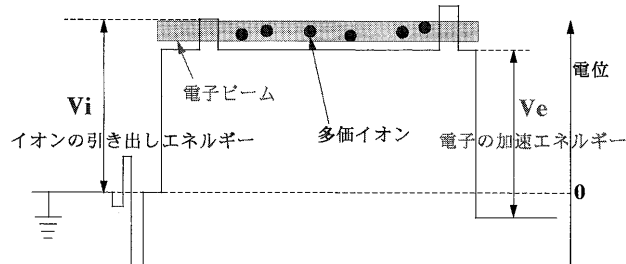
ECRIS は、プラズマを点火し維持するために超高真空中での運転が原理的に不可能であるため、後述の EBIS(T) と比べると生成されるイオンの価数は低い。しかし引き出せるイオンのビーム強度は EBIS (T) と比べると桁違いに高く（価数により数 μA ～数 mA ）、様々な用途に広く使用されている。なお、ECRIS には積極的にイオン自身を加熱する機構はないにもかかわらず、引き出されたイオンのエネルギー幅が比較的大きい（数十 qeV 程度の値を持つことも少なくない）ことや、準安定状態のイオンが混入する可能性があることなどに注意が必要である。

3.3.2 電子ビームイオン源 (EBIS)

EBIS は1970年頃にロシア原子核研究所の Donets[8]らによって開発された多価イオン源である。日本で最初の EBIS は、1980年代初頭に当時の名古屋大学プラズマ研究所で建設された cryo-NICE I[9]と呼ばれるもので、現在も核融合科学研究所で稼働中である。その概略を図3に示す。EBIS は電子銃、ドリフトチューブ、コレクター、ソレノイド磁石、イオン引き出しレンズ系などで構成される。磁石には超伝導磁石を用い、軸方向の強磁場を発生させる。電子銃から出射された電子は図に示されたような電位配置によって加速されると同時に、超伝導磁石により作られた磁力線に沿って径方向に圧縮されながらドリフトチューブに入射する。ドリフトチューブはいくつかに分割されており、上流側と下流側のドリフトチューブに中央部分より高い正電圧が印可され、正イオンが軸方向に閉じ込められる。径方向に対するイオンの閉じ込めは、超伝導磁石によって高密度に圧縮された電子ビーム自身が作り出す空間電荷ポテンシャルによって達成される。このようにに閉じ込められたイオンは、電子ビームの逐次衝突を受け多価イオン化される。ここで電離に寄与する電子はごく僅かであり、ほとんどの電子はドリフトチューブを通過しコレクターにて回収される。多価イオンは電子ビームとの衝突を



(a) イオン源の概略図



(b) イオン源内の電位図

図3 電子ビームイオン源(EBIS)の構造と多価イオン生成の原理。核融合科学研究所の cryo-NICE I の例。

繰り返すことにより加熱され、最終的には下流のポテンシャル障壁を乗り越えてイオンレンズ系に導かれビームとしてイオン源から引き出される（このような引き出し方法は DC モードあるいは Leaky モードなどと呼ばれる）。EBIS の運転で重要な点として、(1)電離レートと閉じ込め性能の向上のため電子電流密度を向上させること、(2)残留ガスからの電子捕獲を極力抑えるため超高真空中から極高真空領域の圧力を保つこと、などが挙げられる。特に、ウランの裸イオンなど高度に電離した多価イオンの生成を行う場合、電離断面積が非常に小さな値 (10^{-24} cm^2 程度) となる一方、電子捕獲断面積が非常に大きな値 (10^{-13} cm^2 程度) となるので、閉じ込め領域を 10^{-10} Pa 程度の極高真空中に保つ必要がある。また、高エネルギー電子ビームにより加熱される多価イオンの閉じ込め時間を向上させるために、軽元素イオンを閉じ込め領域に混入させ、蒸発冷却を行うこともある[10]。

EBIS は多価イオンを装置外部に引き出して用いることのみを想定しているが、閉じ込められた多価イオンから放出される X 線などを観察することを主目的とした装置が 1980 年代の後半に米国のリバモア研究所で開発され、電子ビームイオントラップ (EBIT) [11] と名づけられた。日本では 1997 年、電気通信大学レーザーセンターに Tokyo-EBIT [12] と呼ばれる同型のイオン源が建設された。EBIT は EBIS と同じ原理で多価イオンを生成する装置であるが、イオントラップ内を観測できるように磁場発生にヘルムホルツ型コイルを用いている。EBIS(T) では大雑把に言って、電子エネルギーが生成しうる最高価数を、電子ビーム電流が生成しうるイオン量をそれぞれ決定するが、Tokyo-EBIT では最大 200 keV - 300 mA の電子ビームを発生する

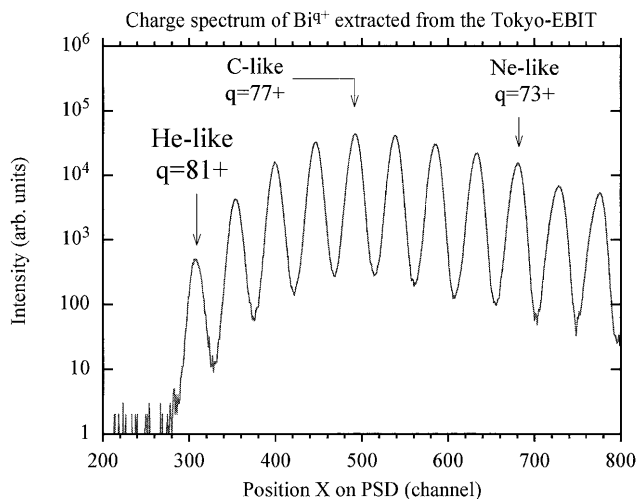


図4 電気通信大学のTokyo-EBITにより生成されたビスマス多価イオンの価数分布スペクトル。EBIT外部に引き出したイオンビームを分析磁石により価数分析したもの。横軸は分析磁石直後に置かれた位置敏感型検出器上の位置。電子ビームエネルギー：50 keV，電子ビーム電流：80 mA。

ことが可能であり，極めて価数の高い多価イオンの生成が可能である。例として，Tokyo-EBITから引き出されたBi多価イオンの価数分布を図4に示す。図に見られるように， Bi^{81+} という高度に電離したイオンを引き出し，ビームとして利用することが可能である。

上述のcryo-NICEやTokyo-EBITのように，多くのEBISでは超伝導磁石を用いているため一般に運転経費が高い。そこで，液体ヘリウムを使わずに運転経費を抑えようとする試みも多くなされている。ここではそれらについて詳しく述べることはしないが，液体窒素冷却の常伝導コイルや永久磁石を用いた小型EBIS[13, 14]や，無冷媒型の超伝導磁石を用いたもの[15]，高温超伝導材[16]を利用したものなどが運転中あるいは開発中である。

3.4 レーザー生成プラズマ

高強度レーザーを物質（気体でも固体でもよい）に照射すると，プラズマが発生し，その中には多価イオンが生成される。そのメカニズムは以下のとおりである。まず，レーザー光を吸収することにより物質中の原子あるいは分子が電離される。多くの元素の電離エネルギーはレーザー光の1光子が持つエネルギーよりも高いため，通常は多光子吸収による電離となる。電離により生じた自由電子は，高強度レーザー場における逆制動放射過程によりエネルギーを得る。十分なエネルギーを得た電子は周囲のイオンや分子を電離し，電離された電子はやはり逆制動放射過程によりエネルギーを得て他のイオンや分子を電離する。このように電子衝撃電離により多価イオン化が進む。大雑把に言えば照射するレーザーの強度が大きければ大きいほど，生成される多価イオンの価数は高くなり，密度も増加する。生成されたプラズマから多価イオンを引き出して多価イオンビームとして利用するようなイオン源はレーザーイオン源[17]と呼ばれることもある。

十分な強度を持つレーザーさえあれば比較的容易に高い

電離状態にある多価イオンを生成可能であることや，他の観測装置や加速器などとの同期を取りながらパルス的に多価イオンを生成できることなどが特長といえるが，逆に，生成されたプラズマを長時間維持することはできず，直流的な運転はできない。

3.5 イオン種導入方法

ECRISやEBIS(T)では，多価イオン生成のために種となる元素をイオン化室に何らかの方法で導入しなければならない。特に応用的見地からは様々な元素の多価イオンを生成することが要求されるため，常温で液体，固体，気体と様々な状態の元素を導入する技術が必要となる。以下，その導入方法のうちいくつかを紹介する。

3.5.1 気体(蒸気)による導入

常温で気体の試料をイオン源内に導入するのは比較的容易であり，基本的にはイオン化室まで導入管を配管し，微調機構付バルブ等を介してイオン源内に導入すればよい。その他，特にEBITでは，指向性の良い分子ビームとして導入する方法も広く採用されている。分子ビームの場合には通常，直径1 mmほどの2つの小孔を数十cmほど離して設置することでガス導入部を二部屋に区切り，二段の差動排気を行う。これにより，イオン源の真空度を極力悪化させることなく，局所的なイオン化領域に必要な最小限の分子量を導入することが可能であるが，消費量のほとんどが差動排気により排気されてしまうので，高価な試料にはいささか不向きである。

ガスによる導入は，希ガスやガス分子のみではなく，液体分子や揮発性の高い固体化合物などにも適用することが可能である[18, 19]。例えば，天文学的興味や核融合炉工学的興味からしばしば研究の対象となる鉄やタンゲステンの導入には， $\text{Fe}(\text{C}_5\text{H}_5)_2$ や $\text{W}(\text{CO})_6$ などが利用される。これらの化合物は室温でも比較的高い蒸気圧を持つが，適宜温めることで必要な圧力を得る。また，前述の分子ビームによる導入方法では，2つの小孔の延長線上に分子線エビタキシシーなどで使用される蒸着セルを置くことで，融点の極めて高いタンゲステンやタンタルなど一部金属を除いて多くの金属を蒸気形で導入することが可能である[20]。

3.5.2 プラズマ内への試料挿入

イオン化室，あるいはイオン化室近辺まで固体試料を挿入すると，イオン化室内のプラズマとの相互作用により固体試料から飛び出した元素が，プラズマ内に混入し多価イオン化する[18, 19]。プラズマに直接触れさせず，イオンスパッタリングにより導入する方法と，プラズマに直接挿入し試料を蒸発させて導入する方法とに大別される。前者は導入量が少なく得られる多価イオンの量も少ないこと，後者は蒸発により試料が削られていくのに伴い試料をプラズマに対して常に前進させなければならないこと，などの欠点があり，他の導入方法に対して好んで使われることはあまりない。

3.5.3 外部イオン源からの導入

蒸着セルを使う方法や試料を直接挿入する方法では，試料の蒸着によりイオン化室が汚染されたり，最悪の場合に

は絶縁部を破壊したりする恐れもある。そのようなことが危惧される場合には、多価イオン源の外部に別のイオン源を用意し、そこで生成された低価数イオンを多価イオン源に導入し多価イオン化する方法が有効である[18]。外部イオン源としては、真空アーク放電型イオン源、表面電離型アルカリイオン銃、レーザーイオン源などが使われる。外部からのイオン導入は、不安定核イオンを多価イオン化する電荷増殖[21]においても必要な技術である。イオンの場合は中性粒子の場合と異なり、磁力線を横切るような方向からの導入は不可能であるため、通常はビーム軸方向からの導入となる。また、導入されたイオンをイオン化室内に捕捉するため、イオン化室の電場などをイオン導入と同期制御する必要がある。

3.6 今後の課題

さて本章で見たように、多価イオン生成技術の進展により、現在では任意の元素の任意の電荷状態を得ることが可能となったと言ってもよい。それでは現在の技術で満足であるかといえば、もちろん決してそのようなことはない。第一に、任意の量のイオンを得ることができていない。生成できるイオンの量は限られており、それに伴い行いうる実験も限られてしまっている。イオン量を増大させる試みは多くの研究室で成されており年々向上が見られるが、まだまだ今後の発展が待たれる課題である。第二に、イオンの温度、位置などの状態を制御しきれていない。中性粒子や単電離イオンに対する昨今の冷却技術やビーム操作技術は目を見張るものがあり、多価イオンに対して達成されている技術との開きは大きい。それは、それだけ非常に難しい技術であるということを意味しているのだが、4.4節にも紹介されているように、果敢にその困難な領域に立ち向かう研究も進められており、今後の進展に期待したい。

参考文献

- [1] H. Beyer, H.-J. Kluge and V.P. Shevelko, *X-ray Radiation of Highly Charged Ions* (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1997) p.44.
- [2] A. Magel, H. Geissel, B. Voss, P. Armbruster, T. Aumann, M. Bernas, B. Blank, T. Brohm, H.-G. Clerc, S. Czajkowski *et al.*, Nucl. Instrum. Methods B **94**, 548 (1994).
- [3] F. Nolden, K. Beckert, F. Caspersb, B. Franczaka, B. Franzkea, R. Mengesa, A. Schwinna and M. Steck, Nucl. Instrum. Methods A **441**, 219 (2000).
- [4] C. Brandau, C. Kozhuharov, A. Müller, K. Beckert, P. Beller, D. Bernhardt, F. Bosch, S. Böhm, F.J. Currell, A. Gumberidze, Z. Harman, J. Jacobi, P.H. Mokler, F. Nolden, R. Reuschl, S. Schippers, E.W. Schmidt, U. Spillmann, Z. Stachura, M. Steck, Th. Stöhlker and A. Wolf, J. Phys.: Conf. Ser. **58**, 81 (2007).
- [5] R. Geller, B. Jacquot and R. Pauthenet, Rev. Phys. Appl. **15**, 995 (1980).
- [6] T. Kurita, M. Imanaka, M. Tsukada, T. Nakagawa, M. Kidera, I. Arai and S.M. Lee, Nucl. Instrum. Methods B **192**, 429 (2002).
- [7] 中川孝秀：日本物理学会誌 **62**, 329 (2007).
- [8] E.D. Donets and V.P. Ovsyannikov, JETP **53**, 466 (1981).
- [9] T. Iwai, Y. Kaneko, M. Kimura, N. Kobayashi, S. Ohtani, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara and S. Tsurubuchi, Phys. Rev. A **26**, 105 (1982).
- [10] B.M. Penetrante, J.N. Bardsley, M.A. Levine, D.A. Knapp, and R.E. Marrs, Phys. Rev. A **43**, 4873 (1991).
- [11] R.E. Marrs, M.A. Levine, D.A. Knapp and J.R. Henderson, Phys. Rev. Lett. **60**, 1715 (1988).
- [12] N. Nakamura, J. Asada, F.J. Currell, T. Fukami, T. Hirayama, K. Motohashi, T. Nagata, E. Nojima, S. Ohtani, K. Okazaki, M. Sakurai, H. Shiraishi, S. Tsurubuchi and H. Watanabe, Phys. Scr. **T73**, 362 (1997).
- [13] K. Okuno, Jpn. J. Appl. Phys. **28** 1124 (1989).
- [14] K. Motohashi, A. Moriya, H. Yamada and S. Tsurubuchi, Rev. Sci. Instrum. **71**, 890 (2000).
- [15] M. Sakurai, F. Nakajima, T. Fukumoto, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Mashiko and H. Sakaue, Nucl. Instrum. Methods B **235**, 519 (2005).
- [16] N. Nakamura, A. Endo, Y. Nakai, Y. Kanai, K. Komaki and Y. Yamazaki, Rev. Sci. Instrum. **75**, 3034 (2004).
- [17] V.B. Kutner, Yu.A. Bykovsky, V.P. Gusev, Yu.P. Kozyrev and V.D. Peklenkov, Rev. Sci. Instrum. **63**, 2835 (1992).
- [18] N. Nakamura, T. Kinugawa, H. Shimizu, H. Watanabe, S. Itho, S. Ohtani, C. Yamada, K. Okazaki, M. Sakurai, M.R. Tarbutt and J.D. Silver, Rev. Sci. Instrum. **71**, 684 (2000).
- [19] L. Bex, J.L. Flambard, M. Dupuis, P. Lehérissier and J.P. Rataud, Rev. Sci. Instrum. **69**, 792 (1998).
- [20] C. Yamada, K. Nagata, N. Nakamura, S. Ohtani, S. Takahashi, T. Tobiyama, M. Tona, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, A.P. Kavanagh and F.J. Currell, Rev. Sci. Instrum. **77**, 066110 (2006).
- [21] F. Wenander, P. Delahaye, R. Scrivens and R. Savreux, Rev. Sci. Instrum. **77**, 03B104 (2006).