

# 電子ビームイオントラップを用いた 重元素多価イオンの可視領域発光線の観測

電気通信大学大学院 情報理工学研究科 基盤理工学専攻

応用物理工学コース 中村信行研究室 市東 佑介

## 1. 序論

近年様々な研究分野において重元素多価イオンの可視領域における分光データが求められている。その一つとして重元素の起源の解明である。原子番号 26 の鉄までの元素は恒星の核融合によりできることが判明している。鉄より原子番号が大きい重元素は安定核種を作る s プロセスと、s プロセスでは合成されない元素を作る r プロセスという元素合成過程が存在する。この r プロセスが起こりえる環境として超新星爆発と中性子星合体の 2 通りが考えられていた。しかし、中性子星合体シミュレーション[1]と中性子星合体に伴うキロノヴァからの電磁波観測[2]により、中性子星合体が r プロセスの起源として有力視されるようになった。一方で r プロセスによって生成された元素の種類や量を正確に知るためには元素の遷移波長や遷移確率などの分光データが必要であるが、それらが不足しているため補う必要がある[3]。図 1 にアメリカ国立標準技術研究所(National Institute of Standard and Technology : NIST)の Atomic Spectra Database(以下 ASD)[4]に報告されているエルビウムの発光線の図を示す。図 1 の黒色プロットは報告されている発光線の本数、赤色プロットは報告されている発光線のうち遷移確率が判明しているものを表す。図から明らかのように分光データが不足しているのが明らかである一方でエルビウムは文献[1]の理論計算に使用されているため重要な元素であり、分光データを収集する必要がある。

次に高精度原子時計の実現である。基礎物理定数である微細構造定数が変動する可能性が示唆さ

れ[5]、現在開発されているストロンチウム光格子時計の  $10^{-18}$  /年[6]以上の精度を持つ原子時計が必要とされている。その候補として多価イオンの光学遷移を用いることが提案されたが[7]、候補とされる多価イオンはすべて価電子を複数個持ち、4f 軌道が開殻であるため非常に複雑な電子配置をとる。そのため候補となる多価イオンには無数の微細構造準位が存在することになり、正確な理論計算を行うことが困難となる。したがって 4f 軌道開殻多価イオンの分光実験を行い理論計算との差異を検証することで、構造理解を試みる必要がある。遷移同定には等電子系列の観測が有用であり、これは束縛エネルギーの差から同じ遷移は原子番号の増加によって短波長側で観測される特徴を利用したものである。これを用いて基底状態が  $4f^1$  の銀様多価イオン及び  $4f^2$  であるカドミウム様多価イオンについては実験と理論計算の比較により遷移同定が行われた[8]。しかし 4f 電子数が増え、基底状態が  $4f^3$  のインジウム様、 $4f^4$  の錫様多価イオンとなるにつれ理解が困難となっている。

以上から本研究は理論計算[1]で使用されているエルビウムについて 2 - 22 価のスペクトルを取得し、価数同定を試みた。また、4f 開殻構造理解に向け原子番号 75 のレニウム、76 のオスミウム、79 の金についてインジウム様及び錫様多価イオンの可視スペクトルを取得し、Flexible Atomic Code[9]による理論計算と先行研究[10]との比較も目的とした。

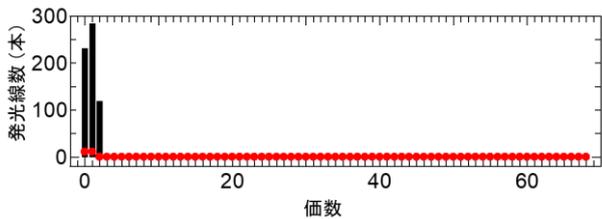


図 1. NIST の ASD[4]に報告されているエルビウム  
の発光線のデータ

## 2. 実験

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) を使用して多価イオンを生成し、可視スペクトルを取得した。CoBIT は主に電子銃、ドリフトチューブ、超伝導コイル、電子コレクターで構成されている。真空チャンバー内のイオンは軸方向についてドリフトチューブの作る井戸型ポテンシャル、径方向について超伝導コイルの作る磁場によって圧縮された電子ビームが形成する空間電荷ポテンシャルによって 3 次元的にトラップされる。トラップされたイオンは電子ビームと衝突し逐次電離を起こす。逐次電離は電子を一つずつ電離させていく手法であり、一度に多数の電子を電離させる場合と比べて必要とするエネルギーが少なく済む利点がある。また、CoBIT は電子ビームエネルギーにより生成するイオンの最大価数を決定できる特徴を持つため、価数同定の際に有用である。

図 2 に本研究の測定系を上から見た図を示す。実験では CoBIT 内部に測定したい試料を導入することでスペクトルを取得している。本研究では観測対象としてエルビウム、レニウム、オスmium、金の 4 元素があるが、CoBIT に導入するには測定する元素によって導入方法が異なる。エルビウム及び金を観測する場合、金属蒸着セルを用いて CoBIT に導入した。エルビウムは金属蒸着セルを 950 °C に、金は 1100 °C に加熱することで固体金属を金属蒸気として導入した。レニウム及びオスmiumを観測する場合はガス導入管を使用した。レニウム、オスmiumはそれぞれ二レニウムデカカ

ルボニル ( $\text{Re}_2(\text{CO})_{10}$ ) とオスモセン ( $\text{Os}(\text{C}_5\text{H}_5)_2$ ) を減圧し昇華させ、ニードルバルブを介して CoBIT に導入した。

本研究における可視領域スペクトルの観測には Jobin Yvon 製分光器の HR320 を使用した。この分光器は Czerny-Turner 型の分光器であり、主に反射型平面回折格子、コリメート凹面鏡、結像凹面鏡で構成されている。回折格子は溝本数 300 本/mm である低分散のものと、1200 本/mm の高分散のものがある。低分散回折格子は強度や波長の情報が乏しい発光線を探査する際に使用し、高分散回折格子は正確な波長を決定する際に使用する。本研究では未観測のスペクトルを取得することに重点を置いているため、すべての元素について低分散回折格子を使用してスペクトルを取得した。分光器によって分光された光は CCD カメラで記録した。本研究で使用した CCD カメラは Andor 社製の iDus 416[11] である。このカメラを使用するにあたり暗電流による影響を減らすため、内臓のペルチエ素子により -70 °C までカメラ温度を低下させて実験を行った。なお、本研究では分光器及び CCD カメラの感度較正は行っていないため、観測されたスペクトルの強度は任意単位で表す。測定時間はすべて 30 分とした。

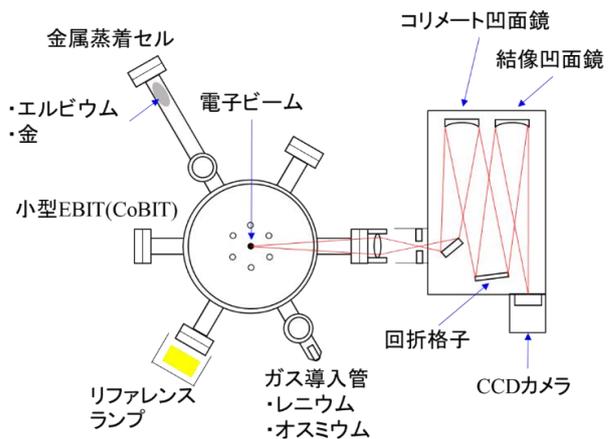


図 2. 本研究における装置配置図

本研究では多価イオンの発光線の価数同定も目的の1つであることから、価数同定の方法について述べる。例として図3にCoBITで観測されたタングステン多価イオンのスペクトル[12]を示す。

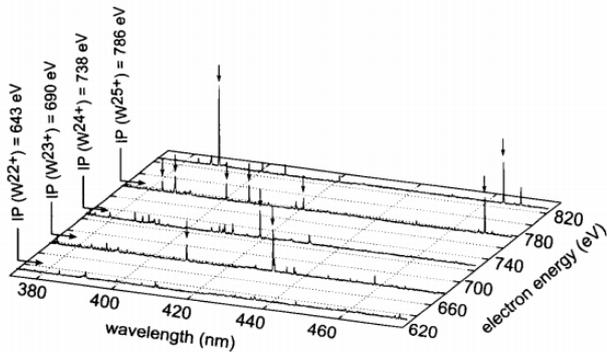


図3. タングステン多価イオンの可視領域スペクトル[12]

図3は右側に電子エネルギーを、左側にタングステンの電離エネルギーを示している。例えば $IP(W^{22+}) = 643 \text{ eV}$ は電子エネルギーを643 eV以上にしたときにタングステン23価が生成されることを意味している。ここで図3中の432 nmの発光線に注目する。この発光線は電子エネルギー630 eVでは観測されず、675 eVで初めて観測され、さらに730 eVでは強度が低下している。このことから432 nmの発光線はタングステン23価の発光線だと同定される。このようにして本研究で観測された発光線についても価数同定を行った。

スペクトルを観測するにあたり、観測される発光線が目的とするイオンからの発光線であるのかを判断することが重要になる。これはCoBIT内部に残留している軽元素や電子銃から蒸発したバリウムといった元素が電子ビームとの衝突によりイオン化し発光している可能性があるためである。文献[13]では電子銃から蒸発したバリウムをイオン化して価数と遷移の同定が行われた。したがって本研究では初めに電子ビームを出し試料導入をしない状態でのスペクトルを取得し、その後試料を導入した状態のスペクトルを観測した。このよ

うにして本研究では目的とするイオンからの発光線かそうでないかを区別した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1. エルビウムイオンの可視領域発光線の観測

初めに、CoBIT内にエルビウムが存在するかを確認するため、先行研究[14]の再現性を確認した。本研究で得られたエルビウム20価のスペクトルと先行研究[14]で得られたスペクトルを図4に示す。図4は横軸が波長、縦軸が強度を表しており、先行研究で得られた発光線の再現性が取れたことが認められる。このことからCoBIT内部にエルビウム原子が存在すると判断し実験を行った。

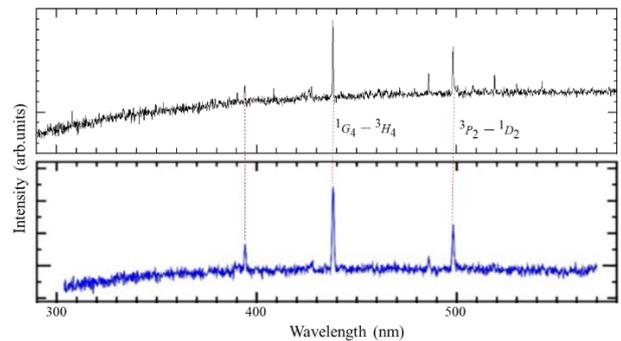


図4. 本研究(上)と先行研究[14](下)のエルビウム20価のスペクトルの比較

図5に本研究で得られたエルビウム2-22価の波長域300-600 nmのスペクトルを示す。図5では横軸が波長、縦軸が強度を表しており、また図中に記載されている数値は設定した電子ビームエネルギーとそのときに生成できるエルビウムイオンの最大価数を表している。図5中黒色の矢印を付けた発光線がエルビウム由来の発光線であると考えられる。これは先述のようにエルビウムを導入しない場合には観測されず、エルビウムを導入したときに観測されたためである。また、矢印を付けた発光線以外にも発光線が観測されているが、これらの発光線はエルビウムを導入しない状態でも観測されていることからエルビウム以外の元素

からの発光だと考えられる。次に矢印を付けた発光線について考える。例として電子ビームエネルギー53 eVでのスペクトルを見ると矢印を付けた発光線は37 eVのときには観測されず、53 eVのときに初めて観測されている。先述した価数同定の方法からこれら2本の発光線はエルビウム3価に由来すると考えられる。同様にしてその他の発光線についても価数同定を行った。

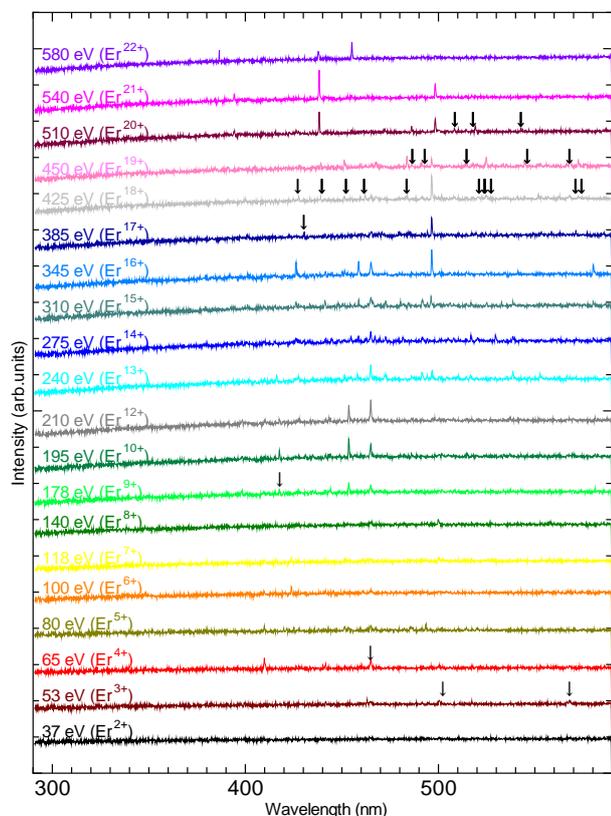


図 5. 波長域 300–600 nm でのエルビウム 2–22 価のスペクトル

次に波長域 500–800 nm において観測されたエルビウム 2–22 価のスペクトルを図 6 に示す。図 6 中においても設定した電子ビームエネルギーを記載しているが、そのとき生成できるイオンの最大価数は図 5 に記載している価数と同じである。

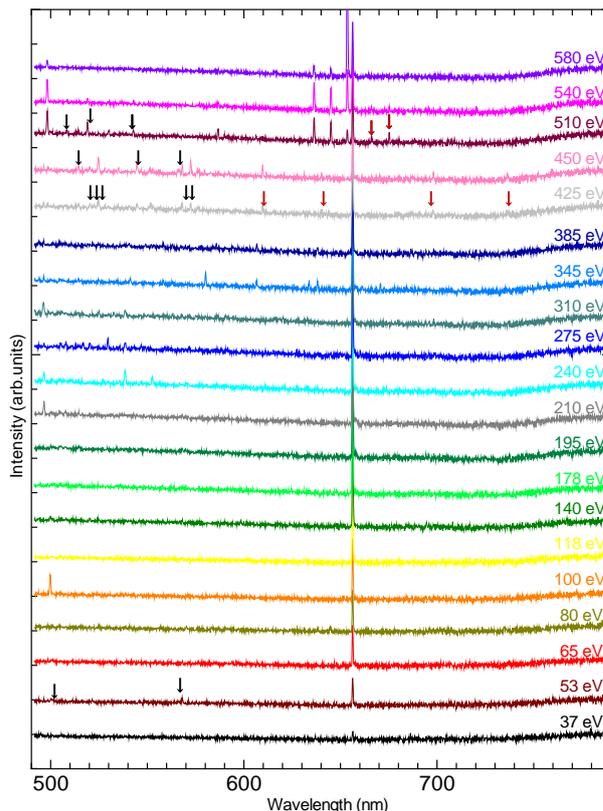


図 6. 波長域 500–800 nm のスペクトル

図 6 において黒色の矢印を付けた発光線は図 5 の観測領域においても観測された発光線を表しており、再現性の確認もできた。また、赤色の矢印を付けた発光線は本波長域で初めて観測された発光線を表している。

以上本研究で得られたエルビウムイオンの発光線についてその価数と中心波長を表 1 にまとめる。

表 1. 本研究で得られたエルビウムイオンの発光線の価数と中心波長の関係

価数	中心波長(nm)
3+	500.5 567.9
4+	465.0
9+	417.7
17+	430.7
18+	439.0 451.3 462.0 483.8 520.3 522.4 524.8 568.1 572.5 609.7 640.2 698.2 736.4
19+	486.1 491.3 514.4 544.7 566.6
20+	508.3 519.1 542.7 666.1 675.2

### 3.2. インジウム様多価イオンの可視領域発光線の観測の試み

我々の研究室ではこれまでにインジウム様多価イオンについて原子番号 70 のイッテルビウムと 74 のタングステンでスペクトルの観測と遷移の同定が行われた[10]。これら 2 種の元素より原子番号が大きく、CoBIT に導入可能である原子番号 75 のレニウム、76 のオスミウム、79 の金について FAC[9]によりエネルギー準位及び遷移の計算を行った。図 7 にレニウムの基底状態付近のエネルギー準位図を示す。図中に割り振られた遷移番号に対応する波長を図の右側に示している。また等電子系列であることから準位間のエネルギー差を除いて、原子番号の変化に伴う準位構造に変化は認められなかった。

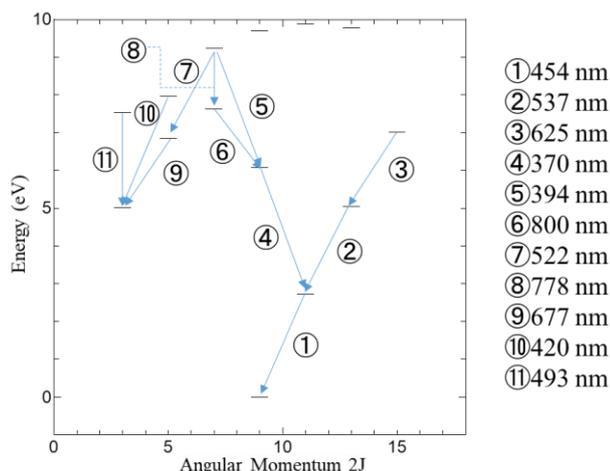


図 7. インジウム様レニウムイオンの基底状態付近のエネルギー準位図

図 8 に本研究で得られたインジウム様レニウム、オスミウム、金の計算結果と先行研究[15]によるタングステンの結果を示す。図 8 は横軸波長、縦軸  $gA$  値を表している。また、等しい遷移を点線で結んでおり、遷移番号は図 7 の遷移番号に対応している。

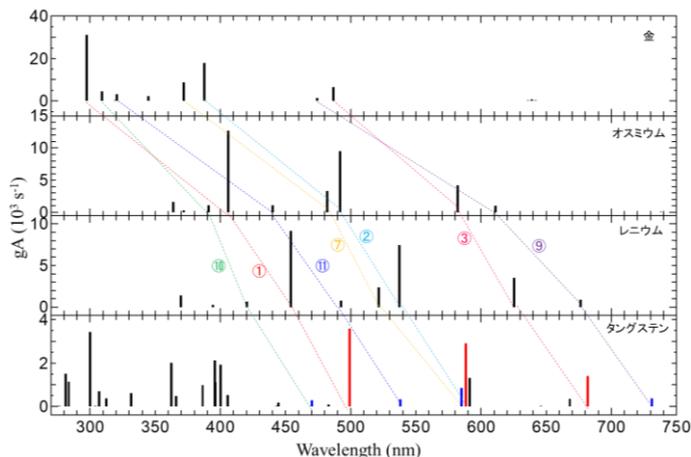


図 8. インジウム様多価イオンの計算結果の比較

FAC による計算結果から可視領域で観測される遷移が求まったので、実験によって観測を試みた。実験ではエルビウム同様、先行研究で観測されている既知の発光線を測定することで CoBIT 内に目的とする元素の存在を確認した。この結果レニウム及びオスミウムは文献[15]の再現性を取れなかったため、その存在を確認できなかった。このため、インジウム様多価イオンの観測ができなかった。金については文献[16]の再現性を取れたが、インジウム様多価イオンからと思われる発光線の観測を行えなかった。

### 3.3. 錫様多価イオンの可視領域発光線の観測の試み

錫様多価イオンについても同様に FAC による基底状態付近のエネルギー準位と遷移波長の計算を行った。図 9 に錫様レニウムの基底状態付近のエネルギー準位図を示す。錫様も同様に準位間のエネルギー差を除き、原子番号の変化に伴う準位構造に変化は存在しなかった。

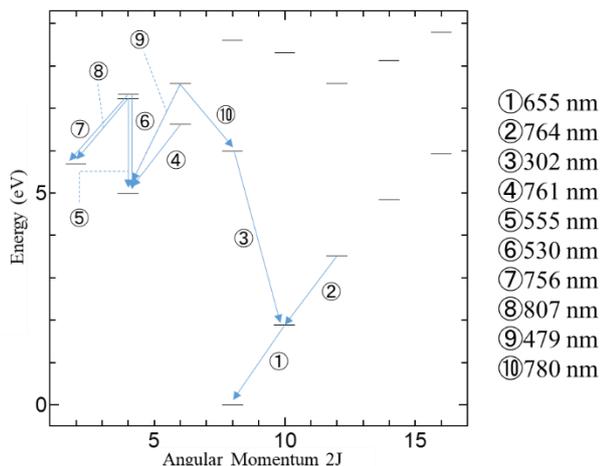


図 9. 錫様レニウムの基底状態付近のエネルギー準位図

錫様タングステン、レニウム、オスmium及び金の遷移波長の変化を図 10 に示す。図 10 中に示す番号は図 9 に示す遷移番号に対応している。錫様についても遷移を FAC 計算により求められたので実験を行ったが、インジウム様同様レニウムとオスmiumは再現性を取ることができなかったことから CoBIT 内に元素が存在しないと判断した。金も同様に再現性は取れるが、錫様からの発光線は認められなかった。

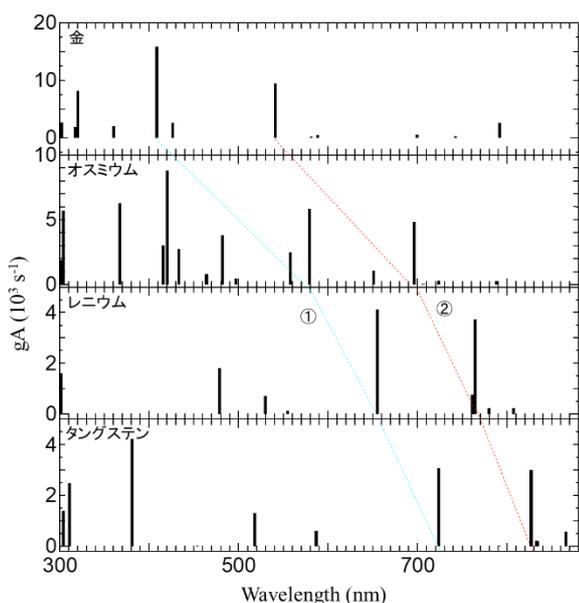


図 10. 錫様多価イオンの計算結果の比較

#### 4. 結論

分光データを補うためエルビウムについて 2 – 22 価のスペクトルを観測し、この結果約 30 本の発光線について価数同定と中心波長の決定を行った。また、4f 開殻構造理解に向け、インジウム様及び錫様多価イオンの観測をレニウム、オスmium及び金について行い、理論計算との比較を試みた。しかしながら、3 種の元素すべてにおいて実験によってスペクトルを観測することができなかった。このため、観測できなかった原因を究明する必要がある。

#### 参考文献

- [1]S.Wanajo *et al.*, *Astrophys. Jour. Lett*, 789:L39 (6pp), 2014 July 10
- [2]Y.Utsumi *et al.*, *Publ. Astron. Soc. Japan* (2017) 69 (6), 101 (1-7)
- [3]G.Gaigalas *et al.*, *Astrophys. Jour. Supp. Seri*, 240:29 (17pp), 2019 Feb
- [4][https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines\\_form.html](https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html)
- [5]J.K.Webb *et al.*, *Phys. Rev. Lett*, 107, 191101 (2011)
- [6]B.J.Bloom *et al.*, *Nature(London)* 506, 71 (2014)
- [7]J.C.Berengut *et al.*, *Phys. Rev. A*, 86, 022517 (2012)
- [8]S.Murata *et al.*, *Phys. Rev. A*, 96, 062506 (2017)
- [9]M.Fu.Gu, *Can. J. Phys.* 86, 675-89 (2008)
- [10]平成 29 年度 村田隼一氏 修士論文
- [11]<https://andor.oxinst.com/products/idus-spectroscopy-cameras/idus-416>
- [12]N.Nakamura and H.Sakaue, *J.Plasma Fusion Res.* Vol89, No.5(2013)299-304
- [13]N.Kimura *et al.*, *Phys. Rev. A*, 100, 052508 (2019)
- [14]平成 28 年度 中島貴之氏 修士論文
- [15]H.Bekker *et al.*, *J. Phys. B:At. Mol. Opt. Phys.* 48 (2015) 144018 (6pp)
- [16]Y.Kobayashi *et al.*, *Phys. Rev. A*, 92, 022510 (2015)