

令和 2 年 4 月 16 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05630

研究課題名(和文) 静電型イオントラップによる準安定状態イオンの精密寿命分光：高電荷イオンへの新展開

研究課題名(英文) Precision lifetime spectroscopy of metastable ions using electrostatic ion beam trap: new development to highly charged ions

研究代表者

斉藤 学 (Saito, Manabu)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：60235075

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：何も無い空間にイオンを長時間閉じ込めることができる静電型イオンビームトラップ装置を使って、準安定状態にある高電荷イオンの寿命を精密測定する方法を開発した。これまで、1価と2価イオンに対する精密測定法を開発したが、本研究ではそれよりも高い電荷状態のイオンに対する精密測定を目指し、方法と装置の改良を図った。本測定法を用いて、準安定状態にあるクリプトンおよびキセノンの3価イオンの寿命を精密測定することに成功した。これによって、本方法が準安定状態イオンに対する新たな精密寿命測定法のプロトタイプになりえることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

励起状態のイオンが自然に壊れずに存在できる時間をその状態の寿命という。励起状態のイオンの寿命に関する研究は、原子・分子物理や放射線物理、プラズマ科学、宇宙科学などの様々な学術研究分野で必要とされている。本研究は、これまで困難であった、準安定状態と呼ばれる励起状態にあるイオンの寿命を精密に測定することを目的とした。本研究の精密測定を実現することは、準安定状態イオンに対する新たな精密寿命測定法のプロトタイプを示すものであり、高精度な寿命データを必要とする多くの研究分野にとって非常に重要な意義がある。

研究成果の概要(英文)：We have studied the method to precisely measure the lifetimes of the metastable states in highly charged ions, using an electrostatic ion beam trap that can confine ions in a restricted vacuum space for a long time. We have developed the method for singly and doubly charged ions so far. In the present study, we improved to be applicable to more highly charged ions. Using this method, we succeeded to precisely measure the lifetimes of the metastable states in Kr^{3+} and Xe^{3+} ions. The present lifetime measurements of metastable states demonstrated that this method can be one of the prototypes for the measurements of metastable lifetimes.

研究分野：原子・分子物理学

キーワード：禁制遷移 放射寿命 イオンビームトラップ 分光計測 プラズマ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

準安定状態にあるイオンの放射寿命は、様々な学術研究分野で必要とされているデータである。原子・分子物理や放射線物理、プラズマ科学の分野でも、たとえば多電子原子の電子状態理論のテストやプラズマの分光診断には、高精度の放射寿命測定データが不可欠である。準安定状態にあるイオンの脱励起は禁制遷移であるために、その放射寿命はミリ秒から秒に至る。これまではこの長時間の寿命を得るために、イオントラップに一定数の準安定状態イオンを蓄積し、その放出光子数の時間変化を測定してきた。この時間依存の減衰曲線から、禁制遷移の寿命が決定された。

一般的なイオントラップを用いた実験では、トラップ内にガスを直接導入し、電子衝撃等でイオンを生成する。このとき、禁制遷移の寿命測定の精度は主に以下の2つの理由によって低下する。一つ目は、トラップに蓄積されるイオン数が時間に対して一定ではなく、導入ガスとの散乱や中性化衝突によって時間とともに減少することである。これが放出光子数の時間変化の測定に影響する。二つ目は、トラップ内で生じた目的外イオンからの近波長の発光が妨害線となる場合である。妨害線の波長が目的イオンからの光子の波長に近ければ近いほど、妨害線の分離測定が難しくなる。

これらの困難に対処するために、禁制遷移の寿命測定において、以下の方法がこれまでとられてきた。まず一つ目の原因を克服するために、トラップへの導入ガス圧力を変化させながら寿命を測定し、両者の関係からガス圧力ゼロの場合の寿命を見積もる方法が行われてきた。しかしこの方法では、ガス圧力の高精度な絶対測定が必要となる。二つ目に関しては、波長が接近していても目的のイオンと目的外のイオンの放射寿命は異なることを利用して、測定された光子の減衰曲線に多重指数関数をフィッティングすることで、目的の放射寿命を導出した。しかしこの方法では、お互いの寿命時間が近いほどフィッティングによる分離が困難となる。よって、高い精度の寿命測定には、蓄積イオン数の変化を精度良く見積もる方法の開発と妨害線を放出するイオンを除去する仕組みとが、寿命測定の高い精度向上につながると考えられた。

イオントラップに関して本研究代表者の齊藤らは、keV エネルギーのイオンビームを蓄積する静電型のイオンビームトラップを開発することに成功していた。このトラップの特徴は、イオン源がトラップ外部に設置できるため、質量分析後の目的のイオンだけをトラップに入射させることができることである。また、1、2 価の低電荷イオンを蓄積するのであれば、その蓄積イオン数を精度良くかつ簡便に測定することができる能力を備えていることである。これらの特長は、上記の測定上の困難を克服するものである。実際に齊藤らは、 Kr^{2+} イオンの 1S_0 準安定状態の寿命を静電型イオンビームトラップで測定し、他グループのこれまでの研究結果に比べて測定精度が向上することを示した。

一方、静電型イオンビームトラップに3 価以上の高電荷イオンを蓄積した場合には、蓄積数の変化を見積もることができないために、禁制遷移寿命の精密測定には至っていなかった。静電型イオンビームトラップを用いた高電荷イオンに対する禁制遷移寿命の精密測定を実現することは、準安定状態イオンに対する新たな精密寿命測定法のプロトタイプを示すものであり、高精度データを必要とする多くの研究分野にとって非常に重要な意義がある。

2. 研究の目的

(1) 静電型イオンビームトラップを用いた精密寿命分光法をさらに発展させ、準安定状態にある高電荷イオン(3 荷以上のイオン)の禁制遷移寿命の精密測定を可能にする。

(2) この方法によって、実際に希ガスの3 価イオン(Ar^{3+} , Kr^{3+} , Xe^{3+})の基底電子配置内での禁制遷移の寿命を決定する。

(3) 得られたデータを過去のデータと比較することで、本測定法の優位性を明らかにする。 Kr^{3+} を例にとると、イオン源で生成した $4\text{s}^24\text{p}^3$ 基底電子配置の $2\text{P}_{3/2}$ 準安定状態イオンの50%以上は磁気双極子遷移によって $4\text{S}_{3/2}$ 状態に300 nmの光子を放出して遷移する。この遷移寿命に対するこれまで報告された理論値は23.3 msである。なお実験値は、 Kr^{2+} の 1S_0 準安定状態の四重極子遷移からの放出光子が強い妨害線となるために、これまで存在していない。よって本方法によって遷移寿命が決定できれば、これが初めての測定データとなる。

3. 研究の方法

本研究で行った方法の概要を、 Kr^{3+} イオンの $2\text{P}_{3/2} \rightarrow 4\text{S}_{3/2}$ 遷移の場合(光子波長300 nm)を例として、図1を用いて説明する。(1)、(2)は本件研究開始時にすでに開発済みであった方法である。

(1) イオンビームトラップへの多価イオンの蓄積

電子衝撃型のイオン源で生成したkeV エネルギーのKrイオンビームを静電チョッパーでパルス化する。そのパルスビームを 45° 分析電磁石で質量分析し、目的の Kr^{3+} イオンビームだけをトラップに入射する。パルスビームの入射後、入口側の電極に所定の電圧を印可することで、パルスビームをトラップ内に閉じ込める。パルスビームは、トラップ内の入口と出口の電極間をトラップ軸上に沿って往復走行し続ける。以上の方法によって Kr^{3+} イオンビームが電極間に蓄積される。

(2) 放出光子の測定

閉じ込められた Kr^{3+} イオンのうち、目的の準安定状態にあるイオンの脱励起遷移からの放出光子を、図 1 のように、トラップ中央部に取り付けられた光電子増倍管によって計数する。目的波長の選択には、バンドパスフィルター（透過波長領域 $300 \pm 14 \text{ nm}$ ）を用いる。測定系の検出効率率は、パルスイオンビーム 1 回蓄積あたり 4×10^{-3} 光子を検出できる効率である。イオンビームのチョッピング時間をスタート時間として光子計数率の時間変化をマルチチャンネルスケーラー (MCS) に記録する。光子計数率はトラップに蓄積されている $^2\text{P}_{3/2}$ 準安定状態の Kr^{3+} イオン数に比例するので、この測定によって蓄積されている $^2\text{P}_{3/2}$ Kr^{3+} イオン数の時間変化を知ることができる。

(3) 蓄積イオン数のモニター

本研究開始時までの実験装置では、1、2 価の蓄積イオンと残留ガスとの衝突で作られる中性粒子を測定することで、蓄積イオン数をリアルタイムにモニターしていた。中性粒子は、電場によってトラップ内には閉じ込められないので、トラップの出入り口より外へ逃れる。この中性粒子数を、トラップ後方のビームライン上に設置したマイクロチャンネルプレート (MCP) で検出し、中性粒子数の時間変化を光子と同時に MCS に記録していた。中性粒子の計数率はトラップに蓄積されているイオン数に比例するので、この測定によって蓄積イオン数を知ることができた。

Kr^{3+} イオンを蓄積した場合には、残留ガスとの衝突によって Kr^{2+} と Kr^{+} イオンが生成し、中性粒子は生じない。そのために、中性粒子ではなく Kr^{2+} および Kr^{+} を検出することで、蓄積イオン数をモニターする。本研究では、この方法を新たに検討して装置を設置し、蓄積イオン数の時間変化を調べる。

(4) 寿命の決定

(2) で得られた光子計数率の時間スペクトルから、 $^2\text{P}_{3/2}$ 準安定状態の寿命を決定する。ただし、残留ガスとの衝突による準安定状態イオンの減少の補正を、(3) で得られる蓄積イオン数の時間変化のデータによって行う。最終的に得られた準安定状態の寿命を過去の理論・実験データと比較し、本測定法の精度を検討する。

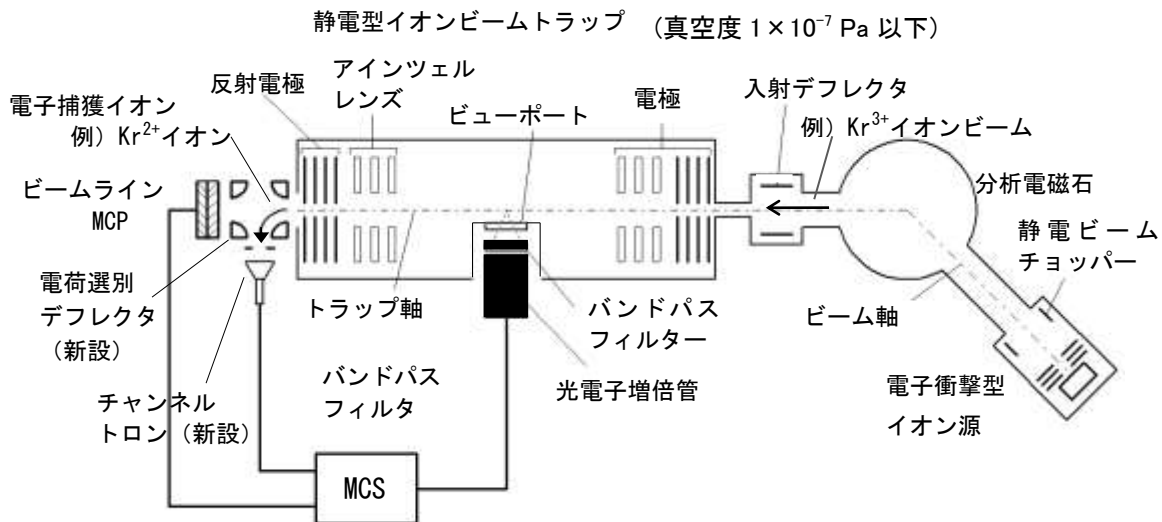


図 1 装置の概略図

4. 研究成果

(1) 蓄積イオン数測定系の設置

トラップ内の残留ガスとの衝突で Kr^{3+} イオンから生じた Kr^{2+} 、 Kr^{1+} イオンがトラップ内でどのような軌道をとるのかをシミュレーションした。具体的には、トラップ内で運動している Kr^{3+} イオンを、瞬間的に Kr^{2+} または Kr^{1+} に置き換えたとき、そのイオンがその後どのような走行をするのかを追跡した。その結果、ほとんどすべての Kr^{2+} 、 Kr^{1+} イオンが電場によってトラップ内に閉じ込められずに、最終的にはトラップの出入り口から出射していくことを確認した。

この結果を受けて次に、図 1 に示すような電荷選別デフレクタとイオン検出用のチャンネルトロンからなる装置を設計、製作、設置した。装置の設置後、以下のテスト実験を行った。a) デフレクタを動作させるとビームライン MCP に粒子が測定されないことで、中性粒子の生成がないことを確認した。b) デフレクタで Kr^{2+} を選別してチャンネルトロンで計数し、計数率の時間変化を MCS に記録した。b) 同様に、 Kr^{+} を弁別して MCS に記録した。この測定によって、 Kr^{2+} の時間減衰率と Kr^{+} の時間減衰率が一致することを確認した。この結果は、それぞれの時間減衰

率はトラップ中の Kr^{3+} イオン数の残留ガス衝突による減衰率と同じになるという予想と矛盾していない。最終的には、統計的に有利になるように、デフレクタの電圧をかけずに Kr^{2+} と Kr^+ を同時にビームライン MCP で測定し、得られた減衰曲線を蓄積 Kr^{3+} イオン数の時間減衰曲線とした。

(2) 光子の測定結果

$^2\text{P}_{3/2}$ Kr^{3+} イオンの放出光子測定の結果が図 2 である。測定時のトラップの真空度は、 1×10^{-7} pa である。図を見ると、時間とともに指数関数的に計数率が減衰していることがわかる。トラップ内のある時間の $^2\text{P}_{3/2}$ Kr^{3+} イオン数はその時に測定された光子計数率に比例するので、図 2 の結果は $^2\text{P}_{3/2}$ の準安定状態にある Kr^{3+} イオンが時間とともに減っていく様子を表している。図中の実線は指数関数をフィットした線である。この指数関数より得られた準安定状態の寿命(数が $1/e$ 倍になる時間) τ_0 は 22.6 ± 1.6 ms であった。ただしこの値は、残留ガス衝突による蓄積イオン数の減少の補正をまだしていない段階での値である。

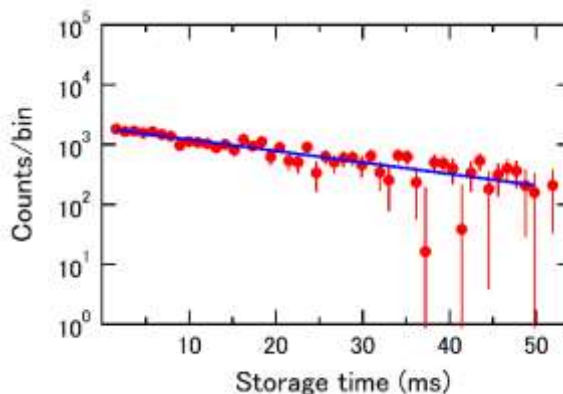


図 2 Kr^{3+} イオンの $^2\text{P}_{3/2} \rightarrow ^4\text{S}_{3/2}$ 遷移によって放出された光子 (波長 300 nm) の測定結果。

(3) $^2\text{P}_{3/2}$ Kr^{3+} イオンの放射寿命の決定

図3が、残留ガスとの衝突で生成した Kr^{2+} 、 Kr^+ イオンの測定結果である。この結果より、トラップ内の Kr^{3+} イオン数が時間とともに残留ガスとの衝突によって減少していくことがわかる。指数関数フィット (図の実線) から求めたイオンの蓄積寿命 τ_s は 1.19 ± 0.02 s であった。目的の $^2\text{P}_{3/2}$ 準安定状態の寿命 τ は $1/\tau = 1/\tau_0 - 1/\tau_s$ によって補正される。この計算をすると $\tau = 23.0 \pm 1.6$ ms が得られた。ただし、図3を見ると、時間の非常に小さいあたり (10 ms 程度) でフィッティング関数とデータにずれのあることがわかる。このずれに対する補正も行った後の最終結果は $\tau = 23.8 \pm 1.8$ ms であった。

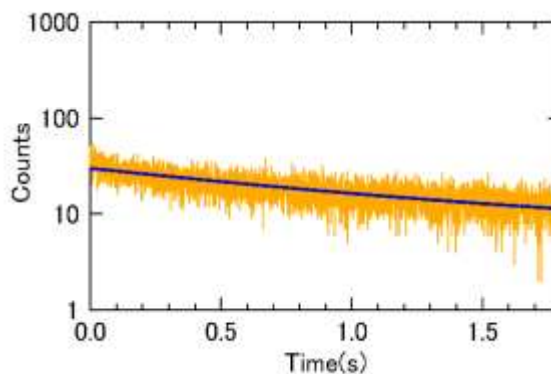


図 3 Kr^{3+} イオンと残留ガスとの電荷変換衝突によって生成された $\text{Kr}^{2+} + \text{Kr}^+$ イオンの測定結果。

(4) 過去のデータとの比較

図4に、 $^2\text{P}_{3/2}$ および $^2\text{P}_{1/2}$ 状態の放射寿命の測定結果と、過去の実験結果および理論計算値を示す。いずれの実験結果の誤差もほとんどが統計誤差によるものである。 $^2\text{P}_{3/2}$ 状態の寿命を見ると、本研究の測定結果は理論計算値と非常によく一致していることがわかる。この測定結果は実験

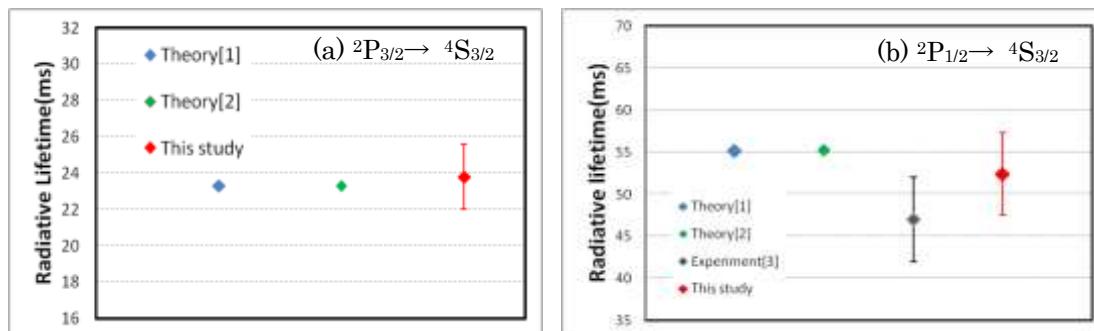


図 4 本研究を含めた Kr^{3+} イオンに対するこれまでの測定結果および理論計算値。

[1] E. Biemont, and J.E. Hansen, Phys. Scr. 33, 117 (1986), [2] J. Reader, Phys. Rev. A 45 7792 (1992), [3] A. G. Calamai and C. E. Johnson, Phys. Rev. A 45 7792 (1992).

値として初めて得られた値である。 $^2P_{1/2}$ 状態の寿命の場合には、本研究の測定結果は過去の他グループの測定結果と誤差の範囲内で一致しているが、わずかに大きい値を示した。一方、理論計算値とは非常によく一致している。

表1はXe³⁺の5s²5p³基底電子配置の $^2P_{3/2}$ および $^2P_{1/2}$ 準安定状態の放射寿命の測定結果である。Kr³⁺の場合と同様に、それぞれの準安定状態は $^2P_{3/2} \rightarrow ^4S_{3/2}$ および $^2P_{1/2} \rightarrow ^4S_{3/2}$ の禁制遷移によって脱励起する。本研究の測定値をこれまでの実験値と比較すると、より大きな値が得られている。特に $^2P_{3/2}$ 状態の寿命に関しては、30%ほど大きな値となった。一方、本研究の測定値は[4]の理論計算値と非常によく一致している。

(5) 研究成果のまとめ

申請者はこれまで、1価および2価の準安定状態イオンの放射寿命を静電型イオンビームトラップによって高精度に測定する研究を推進してきた。本研究課題では、その測定対象を3価以上の多価イオンに広げて、いかなる電荷数の準安定状態イオンに対しても放射寿命の高精度測定が可能になるように研究の発展を目指した。本研究期間内で、測定方法を確立し、Kr³⁺およびXe³⁺のいくつかの準安定状態の寿命を測定することに成功した。また、実験値と理論値の間でこれまで食い違っていた準安定状態寿命を測定し、理論値に一致する寿命が得られた。これらによって、多価イオンの準安定状態の高精度測定法として、本方法が一つのプロトコルになりえることを示した。

表1 Xe³⁺イオンに対するこれまでの測定結果および理論計算値。

[4] E. Biemont et al., *Astron. Astrophys. Suppl. Ser.* 111 (1995) 333.

寿命 (ms) ^o		Theory/Experiment ^o
$^2P_{3/2}$	$^2P_{1/2}$ ^o	
6.6 ^o	15.8 ^o	Theory [2] ^o
6.8 ^o	16.4 ^o	Theory [4] ^o
5.3 ± 0.5 ^o	15.6 ± 0.9 ^o	Experiment [3] ^o
7.0 ± 0.2 ^o	16.6 ± 0.8 ^o	This work ^o

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 M. Saito, H. Kubota, T. Majima, M. Imai, H. Tsuchida, Y. Haruyama	4. 巻 49
2. 論文標題 Radiative lifetime measurements of metastable levels in Kr3+ using electrostatic ion beam trap	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 X-RAY SPECTROMETRY	6. 最初と最後の頁 37-41
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） http://doi.org/10.1002/xrs.3042	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 M. Saito, A. Chikaoka, T. Majima, M. Imai, H. Tsuchida, Y. Haruyama	4. 巻 414
2. 論文標題 Radiative lifetime measurements of 2P3/2 and 2P1/2 metastable levels in triply charged xenon using electrostatic ion beam trap	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B	6. 最初と最後の頁 68-73
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2017.10.024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 斉藤学、春山洋一	4. 巻 71
2. 論文標題 静電型イオンビームトラップの技術とその応用	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 628-635
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） http://doi.org/10.11316/butsuri.71.9_628	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 H. Kubota, M. Saito, T. Majima, M. Imai, H. Tsuchida, and Y. Haruyama
2. 発表標題 Radiative lifetime measurement of metastable levels in Kr3+ using electrostatic ion beam trap
3. 学会等名 19th INTERNATIONAL CONFERENCES ON THE PHYSICS OF HIGHLY CHARGED IONS (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 久保田啓嗣, 斉藤学, 間嶋拓也, 今井誠, 土田秀次
2. 発表標題 静電型イオンビームトラップによる準安定状態3価Krイオンの放射寿命測定
3. 学会等名 原子衝突学会第43回年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Saito, A. Chikaoka, T. Majima, M. Imai, H. Tsuchida
2. 発表標題 Radiative lifetime of metastable Xe3+ measured using an electrostatic
3. 学会等名 XXX International Conference of Photonic, Electronic and Atomic Collisions (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	春山 洋一 (HARUYAMA YOICHI) (00173097)	京都府立大学・生命環境科学研究科・研究員 (24302)	