

JAERI-Tech
95-042



ECRイオン源を用いた放出電子分光実験装置

1995年9月

北澤真一

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課(〒319-11 茨城県那珂郡東海村)あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター(〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内)で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 (株)高野高速印刷

E C R イオン源を用いた放出電子分光実験装置

日本原子力研究所東海研究所材料研究部

北澤 真一

(1995年8月9日受理)

E C R (Electron Cyclotron Resonance) イオン源を用いて、イオン-原子の多電子移行衝突によって放出される電子のエネルギースペクトルの解析実験を行っている。標的原子として従来は気体状の原子・分子を用いる衝突が行われてきたが、それに加えて標的として蒸気状の原子を用いる新しい衝突のシステムを開発・製作した。本報告では、このE C R イオン源を用いた放出電子分光実験装置の開発研究の報告を行う。

Experimental System of Ejected Electron Spectroscopy with ECR Ion Source

Sin-iti KITAZAWA

Department of Materials Science and Engineering
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 9, 1995)

The experiment of analyzing energy spectrum of electrons ejected from multiple electron capture process on ion-atom collision is carried out using ECR (Electron Cyclotron Resonance) ion source. An old collision system using gas atoms as target and a new system using vapour atoms are developed. In this report, the developments and exploitations of the experimental systems for the ejected electron spectroscopy with ECR Ion source are presented.

Keywords : ECR Ion Source, Highly-charged Ion (HCI), Ejected Electron Spectroscopy, Zero-degree Angle Electron Spectroscopy, Source of Ba Atom

目 次

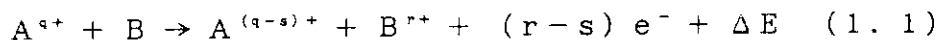
1. 序 論	1
2. 低速イオン実験システム	2
2.1 HyperECRを用いた低速イオン実験システム	2
2.2 イオン源	3
2.3 イオンビーム搬送系	9
3. イオン-標的気体原子衝突実験装置	11
3.1 イオン-標的気体原子衝突系	11
3.2 電子エネルギー分析系	12
4. イオン-標的蒸気原子衝突実験装置	16
4.1 Ba蒸気衝突系の仕様	16
4.2 イオン-Ba蒸気衝突実験系	22
4.3 実験装置の性能の評価	24
5. 結 論	26
謝 辞	26
参考文献	27

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental System of Low Energy Ions	2
2.1 Experimental System of Low Energy Ions with HyperECR	2
2.2 Ion Source	3
2.3 Ion Beam Transport System	9
3. Experimental System of Ion-gas Collision	11
3.1 Ion-target Gas Atom Collision System	11
3.2 Electron Energy Analyzing System	12
4. Experimental System of Ion-vapor Collision	16
4.1 Specifications of Ba Vapor Collision System	16
4.2 Ion-Ba Vapor Collision System	22
4.3 Estimate for the Experimental System	24
5. Conclusion	26
Acknowledgment	26
Reference	27

1. 序 論

本報告のイオン-原子衝突実験装置は、低エネルギー多価イオン衝突の多電子移行過程から生じる放出電子のエネルギー分光を行う装置である。すなわち、多価イオン A^{q+} が、標的原子 B と衝突し、 r 個の電子が移行し $(r-s)$ 個の電子が放出される過程：



における放出電子のエネルギーの解析を行うことができる。この実験によって多価イオンの原子構造の解析や多価イオンと原子が衝突するときの多電子移行の機構を詳しく知ることができる⁽¹⁾。とくに、衝突エネルギーが $10 \sim 10^2 \text{ keV}$ のときには相互作用の間に電子が A , B のそれぞれが作る軌道準位に存在するいわゆる準分子状態を形成する。また、この準分子状態を比較するために、 7N^{3+} , 8O^{4+} , 10Ne^{6+} という He 様イオンのような等電子系列を系統的に調べることが必要である。一方、(1.1) 式の $q=2$ の 2 電子移行衝突の標的原子として最も電子を解離しやすい最外殻が閉殻である希ガス原子、解離する電子が複雑な準位にある分子、さらに最外殻に 2 個の電子を持つために解離する電子が同定しやすいアルカリ土類金属を選ぶことによって異なる機構を知ることができる。

第 2 章では、本実験で用いられている ECR イオン源から衝突系までの実験装置について述べている。第 3 章では、多価イオンと気体状の原子・分子の衝突実験装置と放出電子のエネルギー分光装置について述べている。第 4 章では、多価イオンと蒸気 Ba 標的の衝突実験装置について述べている。

2. 低速イオン実験システム

2.1 HyperECRを用いた低速イオン実験システム

本報告で用いられている実験装置は、東京大学原子核研究所の低速イオン実験室のHyperECRをイオン源とした実験システム上に設置されている。(Fig. 2.1)

HyperECRによって生成した多価イオンは、5~20 kVの電圧で引き出される。アインツェル・レンズ(EL1)によってビームの拡がりを狭めて分析磁石(Analyzing Magnet)によって目的の電荷を持つイオンが選別される。アインツェル・レンズ(EL2)で再び収束された後に振り分け磁石(Switching Magnet)によって、ABCの3本のラインに振り分けられる。本報告の装置はAラインに設置されている。

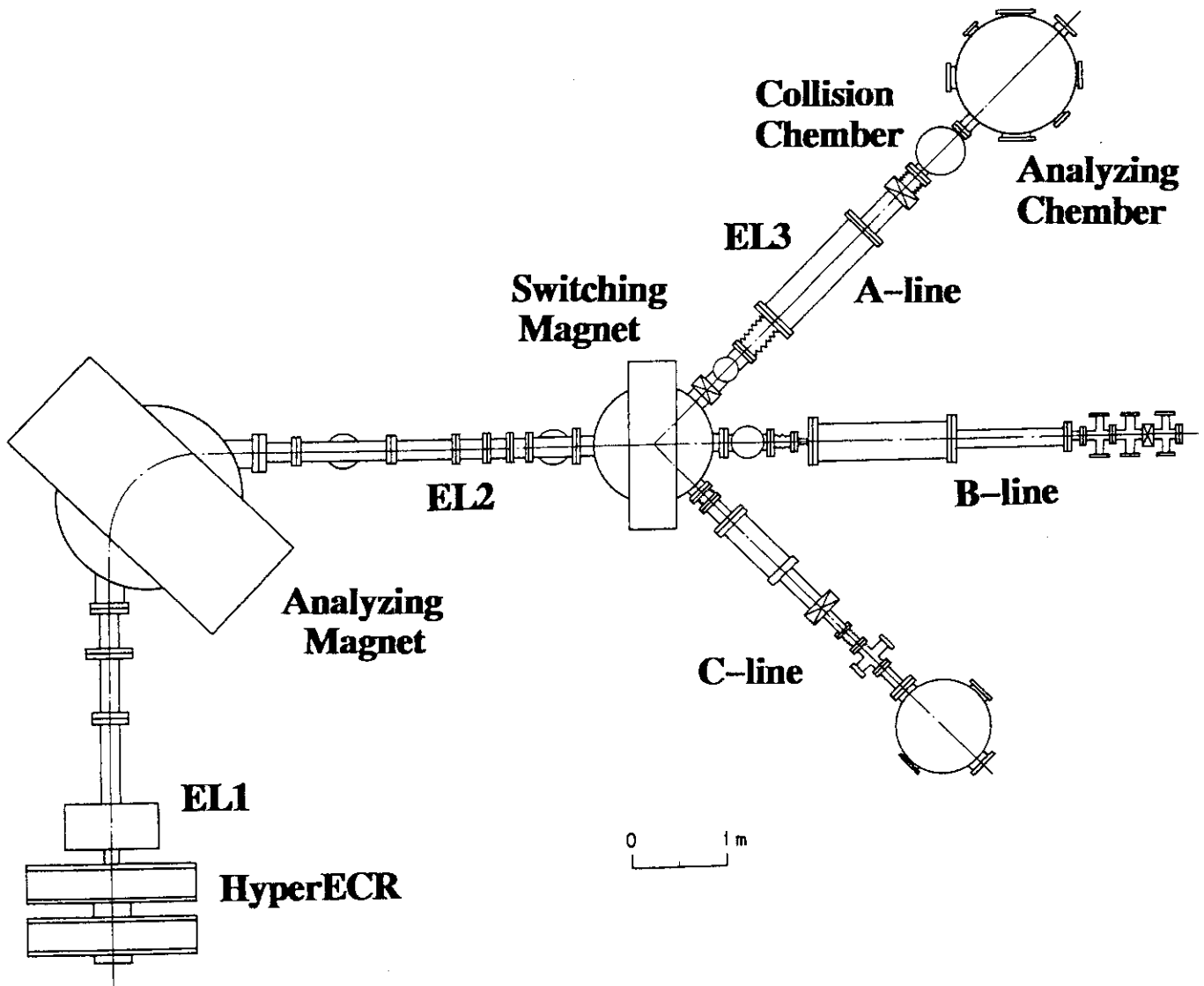


Fig.2.1 Schematic of ECR experiments.

A-line is used for this work; B-line is for a study on the irradiation of HCl;

C-line is for a search for hollow atoms extracted in vacuum.

2. 2 イオン源

2. 2. 1 イオン源としての要請

本研究では、(1. 1)式で $q = 2$ の2電子移行を観測することができなければならない。そのために要請されているイオン源の仕様として次のようなものが挙げられる。

イ) 大電流のイオンビームがとれること。

エネルギー・スペクトルは統計的なデータになる。そのためにS/N比をよくするためには、イベントが定常的に数多く起こる方がよい。そのためにビーム強度は大きい方がよい。

ロ) 重イオンの多価イオンがとれること。

He様の等電子系列での違いを比べるために、N, O, Neのそれぞれ+5, +6, +8価程度の多価のイオンが得られること。そして、その強度は $10 \mu\text{A}$ 以上程度、大きければ大きいほどよい。

ハ) イオンのエネルギーは、数 10keV 程度。

電荷移行相互作用のとき準分子が形成されるためにはイオンと電子の衝突エネルギーは数 $10 \sim 100 \text{keV}$ を必要とするので、特別な加速器は必要ではない。イオンの引き出し電極間に、数 10kV の電圧がかけられればよい。この程度の電圧では大気中で放電が起こりにくく単に電圧をかけるだけでよいので非常に簡単なシステムである。

ニ) イオンビームのエネルギー拡がり小さいこと。

イオンと原子の衝突のエネルギーの依存性や、放出された電子の 0° 分光(2. 4. 1参照)を観測するためにはイオンの持っているエネルギーの拡がり幅は小さければ小さい程よい。

2. 2. 2 多価イオン源の種類

多価イオンを生成するためには、原子を構成している軌道電子を電離してイオン化しなければならない。

多価イオンにするためには、内殻の電子を電離してカスケード状に多価イオンにする方法や、同時に複数の電子を電離する方法も考えられる。しかし、これらはもっとも解離エネルギーの小さい電子から一つずつ電離していく逐次イオン化の方法と比較すると電離断面積は小さく、必要なエネルギーは大きい⁽¹⁾。そのために、多価イオンを生成するためには何らかの方法でイオン(はじめは中性原子)を閉じこめて電子を一つずつ剥ぎ取る逐次電離を行うのがもっとも効率がよい。

重い原子の多価イオンを生成することができるイオン源としては、

- 1) Penning Ionization Gauge Ion Source (PIG)
- 2) Electron Beam Ion Source (EBIS)
- 3) Electron Cycrotron Resonance Ion Source (ECRIS)⁽²⁾
- 4) Laser Induced Plasma Source (LIPS)⁽³⁾

などがある。それぞれ電子衝突による逐次イオン化を用いているが、その過程は異なる。

1) - 3) の動作原理を、Fig. 2. 2 に示す⁽⁴⁾。

PIG イオン源では、電子の加速は外部から与えられた直流電流の放電によって行われる。そして、そのアーク・プラズマは軸方向に沿って発生する。この方法では、放電を用いるために高い真空状態にすることができない。また、プラズマの閉じ込めを行わないので、逐次イオン化が進行せず高い価数のイオンを生成することができない。

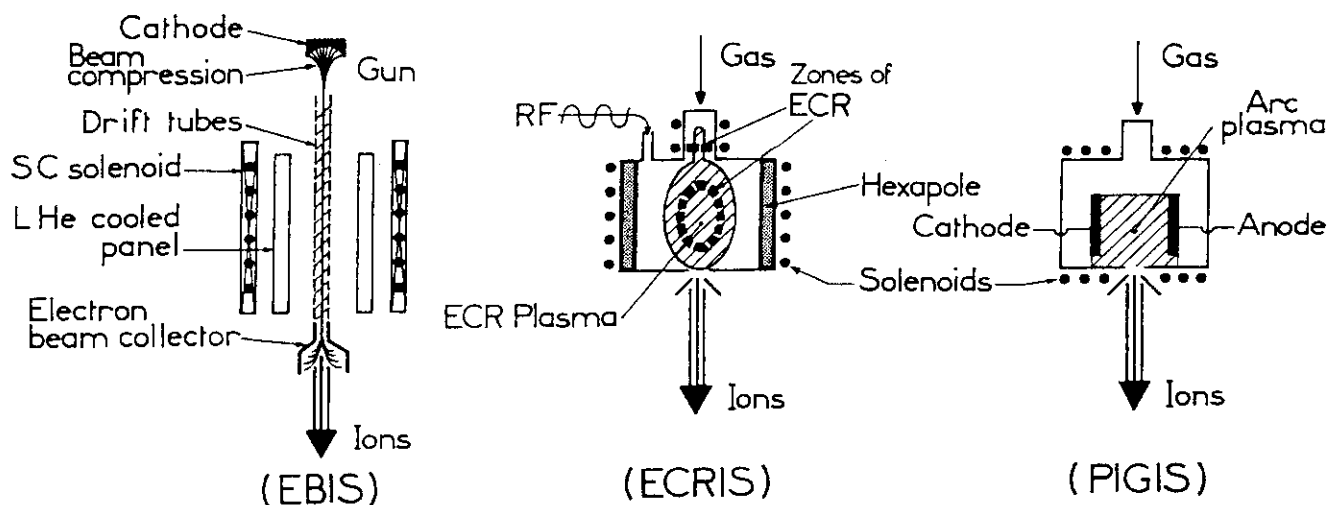


Fig.2.2 Three types of HCl sources. From R.Geller⁽⁴⁾.

EBISでは、大強度の電子ビーム(Electron beam)を外部から入射し、その空間電荷により生じる電場によってイオンは半径方向に閉じこめられる。さらに軸方向には、ドリフト・チューブという電極の電位によって閉じこめられる。電子を外部から導入するために電子のエネルギー強度を大きくする事ができるが、電子の空間電荷がイオンで中和されてしまうので、多くのイオンを蓄えることができない。外部にイオンを取り出す方法として、パルス的に引き出す方法と連続的に引き出す方法がある。パルス的に引き出されたイオンは $50 \times q \text{ eV}$ (q は価数)の大きなエネルギー幅を持ち、引き出されるイオン数も $10^{12} \sim 10^{13} \text{ charge/pulse}$ と小さい。これに対して、奥野ら⁽¹⁾によって開発されたmini-EBISではエネルギー幅が $0.8 \times q \text{ eV}$ 以下の連続的なイオンの引き出しができるようになった。しかし、イオンの収量は C^{5+} で $5 \times 10^4 \text{ cps}$ と少ない。

ECRイオン源では、マイクロ波電場による電子サイクロトロン共鳴(Electron Cycrotron Resonance)で電子を加速し、ミラー・コイルと多極磁石によってプラズマの閉じこめを行う。イオンビームは連続で取り出すことができ、生成イオンの電荷分布も良い。

LIPSでは、レーザー光を固体表面に照射し固体試料を直接蒸発させてプラズマを生成する。多価イオンを生成するためにレーザーは、高出力・高密度の電磁場($\sim 10^{10} \text{ W/cm}^2$)でなければならない。したがって、レーザー幅は短く($\text{ns} \sim \text{ps}$)する必要がある。そのために、イオンビーム強度は小さく、生成イオン数は 10^{13} pps と少ない。一方、気体を用いる必要がないので超高真空($< 10^{-7} \text{ Pa}$)を保ったまま超低速多価イオン($\sim 10 \text{ eV}$)を取り出すこともできる⁽⁵⁾。

以上の4種類のイオン源の価数分布、イオン強度の要因をまとめたものがTable 2.1である⁽⁶⁾。

Table 2.1 イオン源の価数分布とイオン強度の要因

イオン源	高価数分布状態の要因	高強度ビームの技術
PIG	間接的な熱陰極 緩和放電 パルスモード化 ガスの消費 陰極の材質	パルス化したガスのフィード 定常電場 サポートガス（混合ガス） 放電の幾何学的配置
EBIS	電子のエネルギー イオン-イオン冷却 空間電荷の補償	電子の流量密度 連続引き出しモード イオン-イオン冷却
ECR	マイクロ波の周波数を高くする 軸方向磁場の強度を大きくする	マイクロ波の周波数を高く パルス（アフターグロー）モード 電子銃 プラズマ銃 表面のコーティング ディスクをバイアスにする
LIPS	レーザーのパワー密度	レーザーのパワー密度 空間電荷の電子による補償

2. 2. 3 ECRイオン源

本研究で用いられているECRイオン源は、HyperECRとよばれるものである。HyperECRイオン源について詳細に研究され報告されている⁽⁷⁾。

HyperECRの断面図をFig. 2. 3に示す。

2組の電磁石によってミラーコイルが形成されている。その中に永久磁石で構成された6極磁石が置か

れ、その内部に銅製のプラズマチェンバーが設置されている。この内部にECRプラズマが生成される。マイクロ波、試料ガスは上流側より軸方向に沿ってプラズマチェンバー内に導入される。イオンの引き出し電極と、アインツェルレンズは下流側に置かれている。

HyperECRの主なパラメーターは、Table 2. 2のようになっている。

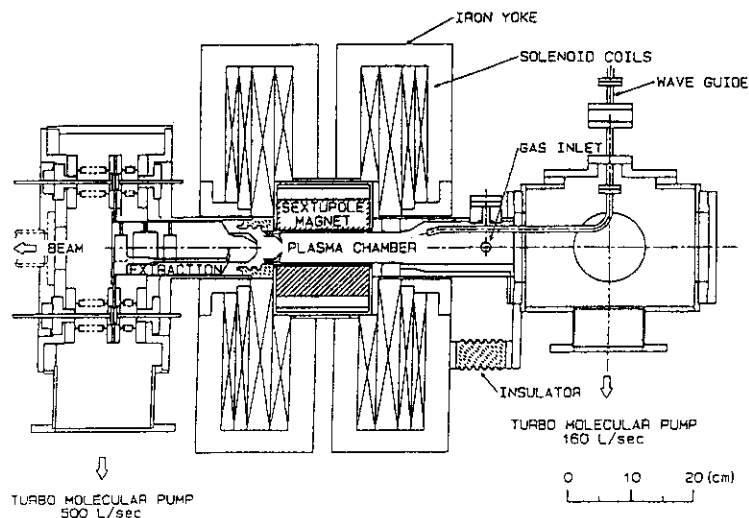


Fig.2.3 Cross section of HyperECR

Table 2. 2 HyperECRの主なパラメーター

マイクロ波源	周波数	14.25 GHz
	最大出力	2.0 kW
プラズマチェンバー	直径	50 mm
	長さ	190 mm
多重極磁石	6重極	
	最大表面磁場	1.06 T
	材質	Nd-Fe-B
	内径	57 mm
ミラー磁場	長さ	150 mm
	最大磁場 (軸方向)	1.2 T
	最大電流	600 A
	最大出力	72 kW
真空ポンプ	上流	500 l/sec
	下流	160 l/sec

電子サイクロトロン共鳴(Electron Cyclotron Resonance)の共鳴角速度 ω は、一様磁場 B の中を垂直に運動する質量 m 、電荷 q の荷電粒子に対して、

$$\omega = 2 \pi f = \frac{qB}{m} \quad (2.1)$$

である。14GHzのマイクロ波に対しては、およそ $B=0.5$ Tである。このために6極磁石には強い磁場が要求され、永久磁石としては現在の商業用の最高位のNd-Fe-B合金(NEMAX35)製で、最大BHが 280 kJ/m^3 のものが用いられている。ミラーコイルとしては、太さ4cmの純鉄を芯とした、2つの電磁石が用いられている。

プラズマが安定的に閉じこめられるためには、軸方向にも半径方向にもすべての方向に対して、 $|B|$ の強さが増加する絶対磁気井戸の中に閉じこめるのがよい。このかたちを、極小磁場配位またはBminimum構造という。ECRイオン源が十分な機能を発揮するには、この構造をとることが必要だと経験的に知られている。そのために、ミラーコイルに対して6極磁石はIoffバー(交互に異なる方向に電流が流れている棒)になるように配置されている。

HyperECRの真空は、上下流両側の2台のターボ分子ポンプ(Turbo Molecular Pump)によって排気される。イオン源として作動するときには、残留ガス圧 10^{-5} Pa以下、試料ガス 10^{-6} Pa程度で行われる。

Fig. 2.4に、HyperECRより引き出されたArイオンの質量スペクトルを示す。このイオン収量の値は、引き出し電圧20kVで引き出し、分析電磁石で分析したものである。

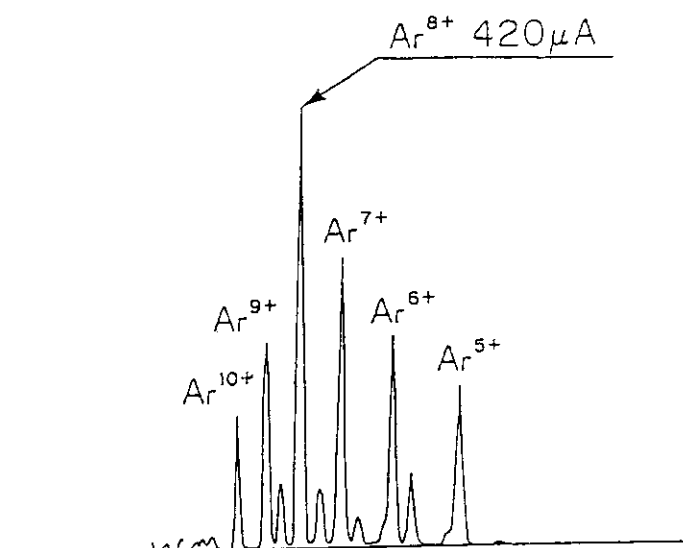


Fig.2.4 Typical charge state distribution (CSD) of extracted argon ion beam from HyperECR. The parameters were nearly an optimum condition for +8 charge state.

気体試料を用いたイオン収量をTable 2. 3に示す。これは、それぞれの価数での収量が最高になるように調整した値である。

Table 2. 3 Hyper ECRの主なイオンの収量 (e μ A)

	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
N	315	300	57								
O	500	500	490	60							
Ne	240	195	115	65	32	1.5					
Ar					480	220	-	43	13	11	2.2

また、Hyper ECRでは、Au, Taなどの高融点金属試料の多価イオンの生成も研究されている⁽⁸⁾。

2.3 イオンビーム搬送系

イ) 偏向分析磁石

イオン源から加速されて引き出されたイオンビーム中の粒子には、様々な価数のイオンが混ざっている。このイオンビームの中から特定の価数のイオンを選び出さなければならない。本システムでは偏向分析磁石を用いた方法で行われている。

イオンがイオン源中でもっている運動エネルギーは数 eV で引き出しのエネルギー (> 10 keV) と比べて小さいので、同じ価数 q のイオンは運動エネルギー qV を持つものとしてよい。

これらのイオンがビームの方向に垂直な大きさ B の一様な磁場中を通過すると、質量 m の粒子は運動方程式、

$$m \frac{v^2}{r} = qVB \quad (2.2)$$

に従う。ここで、v は速度で $v = \sqrt{2qV/m}$ 。これを解いて、

$$r = \left(\frac{m}{q} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2V}{B} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.3)$$

半径 r の円軌道を描く。よって、r, V, B を固定すれば m/q が選別できる。すなわち磁石に流す電流の値を変えて磁場 B を決めることによって、それに応じた曲率半径の比電荷 q/m を持つイオンだけがスリットを抜けることができる。また、このことは m/q が同じイオン、例えば、 $^{12}\text{C}^{6+}$, $^4\text{He}^{2+}$, $^1\text{H}^{2+}$ を分離することはできないことを示している。分析磁石によって測定された質量スペクトルは、Fig. 2.4 のようになる。縦軸は分析磁石を通過しファラデーカップで検出されたイオン電流を示す。横軸は磁場 B の値なので、(2.3) 式より $\sqrt{m/q}$ と読み替えることができる。電荷の同定には、(2.3) 式の値から絶対値を求めるよりも、ECR 内に残留ガスとして H (水素原子) が含まれていることにより、 $B=0$ と H^+ ($m/q=1$) の値からの相対的な目盛りを用いている。

分析磁石の後には、振り分け磁石 (Switching magnet) とよばれる 45° 偏向用電磁石を用いて 3 系統のビームラインに分け 3 つの実験装置 (ライン) に導入することができる。(Fig. 2.1 参照) この振り分け磁石の原理は分析磁石と同じだが、運動エネルギーと m/q が同じイオンのみを曲げて通すことができる。振り分け磁石の磁場が無ければ、イオン・ビームは直進し B ラインに導入される。A ラインと C ラインはそれぞれ C ラインから 45° 曲がっている。振り分け磁石の極性を逆にすれば A ラインと C ラインの振り分けができる。

振り分け磁石によって 3 本のラインに分けられる実験装置にはそれぞれ別のグループが実験を行っている。A ラインが本報告で述べられている放出電子の分光実験に用いられている。B ラインは電総研の林らによる多価イオンの照射効果の実験⁽⁹⁾に用いられている。C ラインは東京大学の山崎らにより空洞原子の真空中における引き出し実験⁽¹⁰⁾が行われている。

ロ) 電界レンズ

イオンビームが通るビームライン上には、ビームの拡がりを制御するためにアインツェル・レンズ (Einzel Lens or Unipole Lens) が入っている。アインツェル・レンズは3電極構成で外側の電極電位が等しい電界レンズである。

(Fig. 2. 5)

収束の原理は光学レンズとほぼ同じである。レンズを通過するイオンは電場の方向に加減速されるが電場の対称性のために運動エネ

ルギーはレンズの前後では変わらない。アインツェル・レンズの外側の電極はチェンバーと同じ接地電位で、中間の電極のみが高電位となる。中間電極に与えるレンズ電圧は、正負のどちらでもレンズ作用は可能であるが、通常は入射イオンビームを減速する正電圧が用いられる。この場合に必要なレンズ電圧はビームの加速電圧以下である。これに対して負電圧にし加速モードにすると減速モードよりも色収差が小さくなるという長所があるが、加速電圧と極性が逆で絶対値がかなり大きなレンズ電圧が必要となるので本実験では用いていない。

本実験装置では、3組のアインツェル・レンズを用いている。Fig. 2. 1のEL1はECRIオン源から引き出されたイオンのビーム拡がりを小さくするために付けられている。EL2は振り分け磁石の前でイオンビームの拡がりを小さくし、振り分け磁石通過後の収差を小さくしている。Aライン上のEL3は、衝突セルの中に最大限のイオンビームを入れるために絞り込んである。この3組のアインツェル・レンズはそれぞれ3枚の電極 (Fig. 2. 5) がそれぞれ円筒状で幅が広いものを用いている。円筒状でも円盤状でも収束の原理は全く同じであるが、光学レンズと同様で焦点距離が同じならレンズが厚い方が収差が小さい。

ハ) 静電偏向

ビームラインの向きの微調整を行うために、ビームライン上に2組の静電偏向電極対 (ディフレクター) が垂直に設置されている。イオンが電極間を通過するときには静電場によって加速度が生じイオンビームが偏向される。この電極対を水平・垂直方向にそれぞれ配置することでイオンビームの方向を制御することができる。

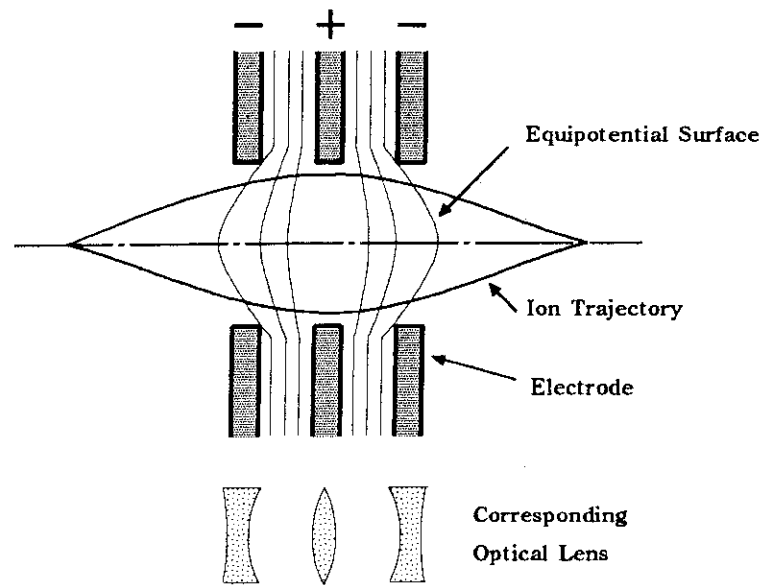


Fig.2.5 Schematic illustration of Einzel Lens

3. イオンー標的気体原子衝突実験装置

3.1 イオンー標的気体原子衝突系

イオンビームはガスセルに導入され標的気体分子と衝突する。ガスセルはFig. 3. 1 のようになっている。長さ5 cm、ビームの入口出口の直径はそれぞれ2. 0 mm, 2. 5 mmである。

衝突によって放出される低エネルギーの電子に対する地球磁場や真空ポンプその他の電気機器による外部磁場の影響を低減するために、ガスセルは2種類の μ -メタルで覆われている。

ガスセルの電位を可変にするために、Fig. 3. 1 のような配置を取り電氣的に浮かすことができるようにしてある。ガスセルの電位を可変にすることでイオンビームとレンズ、デフレクター、デフレクターまたは残留ガスなどの衝突によって生じる2次電子とガスセル内で放出される電子をそのエネルギーの違いから弁別することができる。

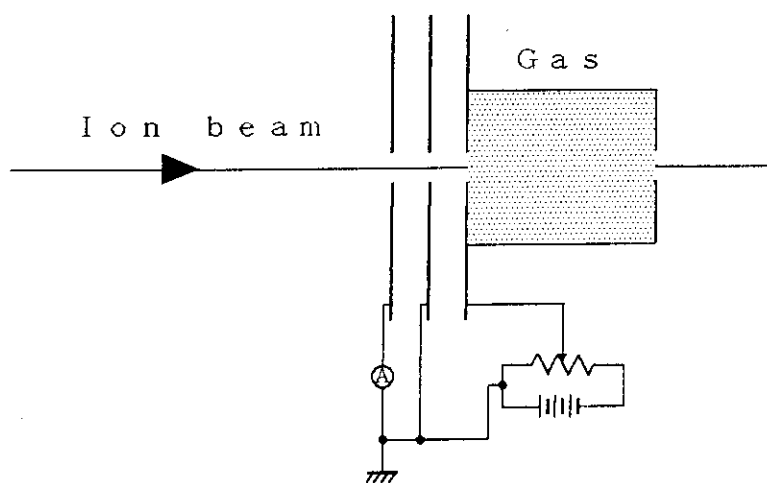


Fig. 3. 1 Schematic diagram of gas cell

3.2 電子エネルギー分析系

3.2.1 0° 電子分光法

イオンと原子・分子の衝突による放出2次電子のエネルギースペクトルを測定する方法として、本システムでは、入射イオンビームと同方向に放出された電子を観測する0°電子分光法が用いられている。放出される電子の方向はランダムであるが0°電子分光法では放出系と実験室系のドップラー補正や検出器のみなし立体角の補正などが簡単になるために測定精度が高くなる⁽¹⁾。これは放出電子の運動力学的効果(kinematic effect)から生じるものであり概念的には次のようになる。

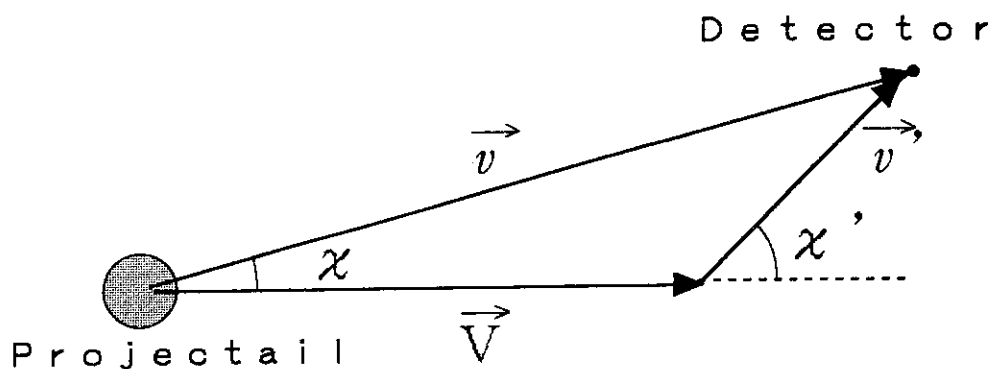


Fig.3.2 Vector diagram formed by emitter velocity V and the velocities v and v' of the ejected electron in the laboratory and the emitter frame of reference, respectively.

実験室系(Laboratory frame)で考えると、入射粒子(Projectail)は、 \vec{V} の速度で運動しながら、検出器(Detector)の方向 (χ) に対して電子を \vec{v} の速度で放出する。しかし、入射粒子の運動系(放出系:emitter frame)で考えると、 χ' の方向へ \vec{v}' の速度で放出している。ここで χ' は \vec{v}' と独立ではないことから高次の項が発生する。そのために、観測されるスペクトルがシフト(shifting)、伸縮(stretching)、拡張(enhancing)などを起こす⁽¹⁾。これらの影響を防ぐために $\chi = \chi'$ の方向すなわち $\chi = \chi' = 0^\circ$ で観測を行う。ただし、この場合は電子が180°逆の方向に放出されたものは、速度が低いものとして観測され、同じスペクトルが2重化(doubling)してしまう。

3. 2. 2 電子エネルギー分析器

電子のエネルギー分析器のシステム図を、Fig. 3. 3に示す。

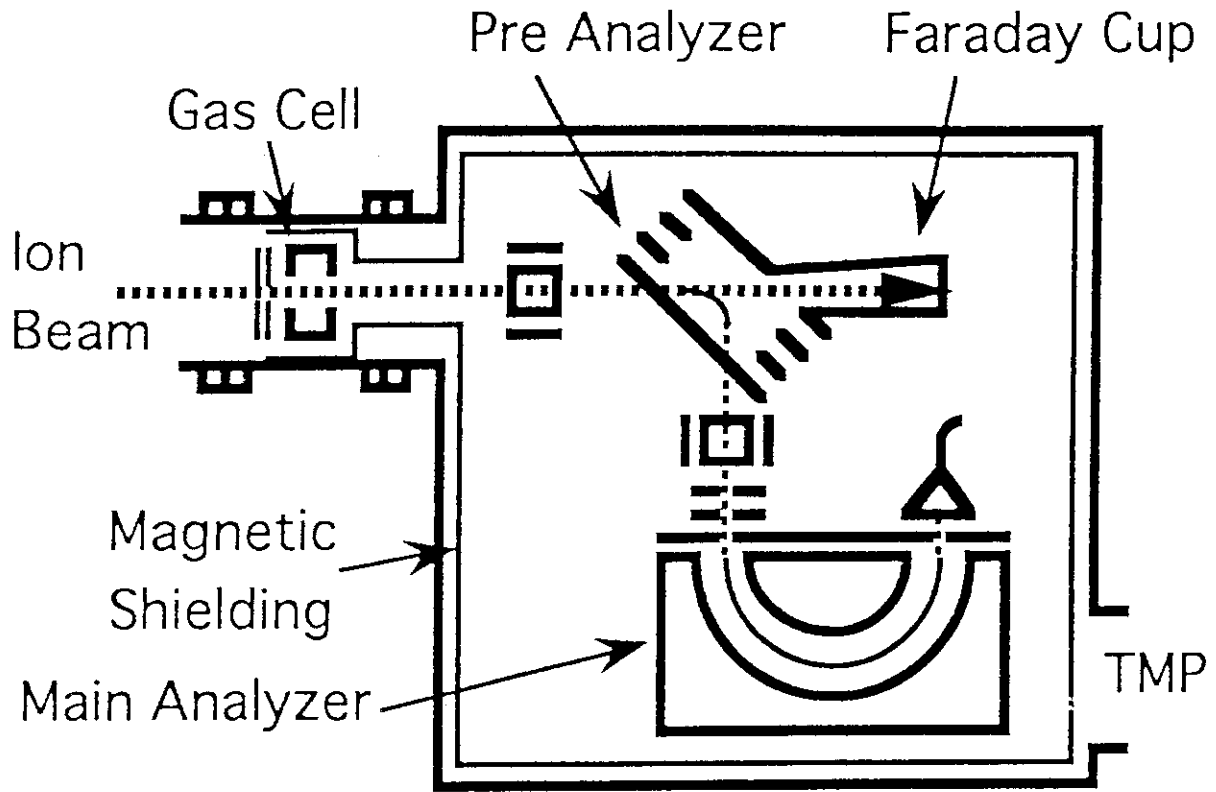


Fig.3.3 Schematic illustration of electron energy analyzing system

放出された電子は、タンデム型電子スペクトルメーターで、イオンビームの入射方向に対して 0° の角度で観測される。

45° 平行平板型静電分析器（このシステム中では、前置分析器：Pre-analyzer）により電子とイオンが分離される。

静電場 E 中では荷電粒子 q は、 qE の力を受けるが電子に対してイオンの質量は 10^4 程度大きいので、ほぼ直進しファラデーカップに達する。これに対して電子は軽いので 45° 曲げられて、疑似半球型静電分析器⁽²⁾（Jost 型分析器：このシステム中では、主分析器：Main-analyzer）へと導かれる。

疑似半球型静電分析器は、

- イ) 入射ビームと分散面のなす方向に収束性があり強度が強くとれる
 - ロ) 電極の形状が単純でコンパクトにできる
 - ハ) 側電極の電位に差を与えることによってビームの軸を変えることができる
- などの利点がある。

疑似半球型静電分析器の理論的なエネルギー分解能は、

$$\text{FWHM} = \frac{wE}{2R} \quad (3.1)$$

w : スリット幅 R : 軌道半径 E : 通過エネルギー

で与えられる。

本システムでは、 $w = 1 \text{ mm}$ 、 $R = 52 \text{ mm}$ であるから、 $E = 10 \text{ eV}$ のとき、 $\text{FWHM} \sim 0.1 \text{ eV}$ である。

疑似半球型分析器に入ることができる電子のエネルギーはこの前の減速電圧によって決定する。疑似半球型分析器は電子の通過エネルギーを一定にするために平行平板型分析器への偏向電圧と同じに設定されている。疑似半球型分析器を通過した電子は、セラミックス製の電子増倍管（セラトロン）で検出される。イオンビームの強度は時間的に多少の変動する。この変動による誤差を防ぐために電子のエネルギーの掃引は時間ではなくガスセルを通過したイオンの電気量によっておこなう。このイオン量の計測が平行平板型分析器の奥のファラデーカップで行われる。

3. 2. 3 信号処理系

検出された信号の処理系の系統図はFig. 3. 4のようになる。

電子増倍管で得られた信号は、前置増幅器(Pre-amplifier), 主増幅器(Main-amplifier)で直線増幅される。その後、単一チャンネル分析器(Single-channel Analyzer(SCA))で信号の中から電子によるイベントだと思われる高さのピークを持つものだけが有為な信号としてTTLレベルの矩形パルスとして出力される。このときパルスイベントが飽和しないように計数率計(Rate meter)で監視される。SCAからの信号は多重チャンネル分析器(Multi Channel Analyzer (MCA))に入力される。

MCAのチャンネルの掃引のトリガーは、ファラデーカップで検出したイオン電流を電流積分器(Current Integrator)で積算した値により掃引制御器(スキャン・コントローラー)から送られてくる信号による。掃引制御器からは同時にステップ・スキャンが出される。このステップ・スキャンはDC増幅器を経て主分析器、前置分析器の電圧を変え検出される電子のエネルギーの値を掃引する。MCAに入った信号はMCS(Multi-Channel Scaler)として、掃引が繰り返される。MCAに蓄積されたデータは、パソコン(Personal Computer)に転送され処理される。

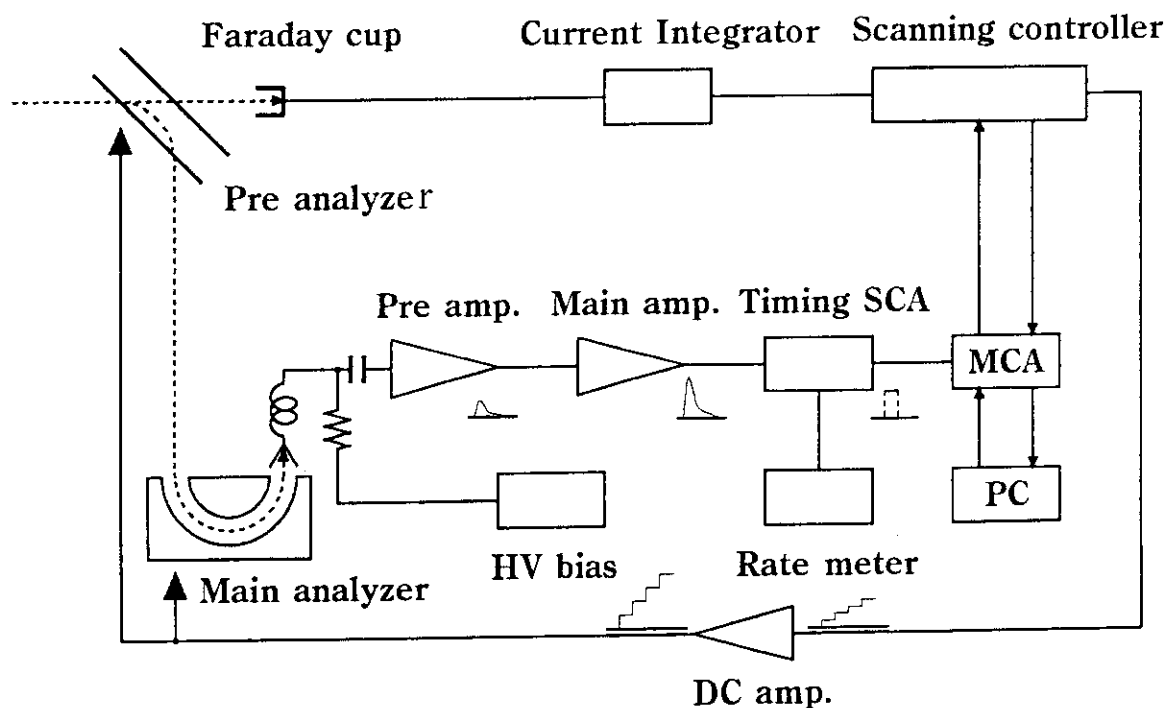


Fig.3.4 Schematic diagram of signal analyzing system

4. イオン-標的蒸気原子衝突実験装置

4.1 Ba蒸気衝突系の仕様

4.1.1 標的

第3章で述べた装置は、標的として気体状のものを外部から導入していた。この方法は、簡便であるという利点をもつが、標的分子が常温で気体状のものに限られるという欠点を持つ。過去の2電子移行実験を例にとっても気体を標的にしたものは多く見られるが、その他の標的を用いたものはほとんど見られない⁽¹⁾。

そこでアルカリ土類金属の蒸気を標的として用いるシステム、その中でもとりわけBaの蒸気を標的としたシステムを設計製作した。これは、Baをはじめとするアルカリ土類金属からの2電子移行過程が多く新しい物理的現象を含んでいることによる⁽²⁾。

また、標的として用いられるためには、計測に十分な量の必要なイベントが起こらなければならない。気体標的の実験ではガスセル内の圧力は 10^{-2} Pa位が最適な値とみなされた。圧力がこれより高いと1電子移行衝突を起こした入射イオンが他の標的と再び衝突して2個の電子を得る2重衝突(Double collision)が多くなり2電子移行衝突との区別が付かなくなってしまう。圧力がこれより低いとイベント数の減少により膨大な測定時間が必要となる。蒸気標的の場合は、ガスセルと比べて衝突領域が10分の1になっているので 10^{-1} Pa程度は必要である。

Fig. 4. 1⁽³⁾よりBaを 10^{-1} Paにするためには860 Kの温度が必要となる。

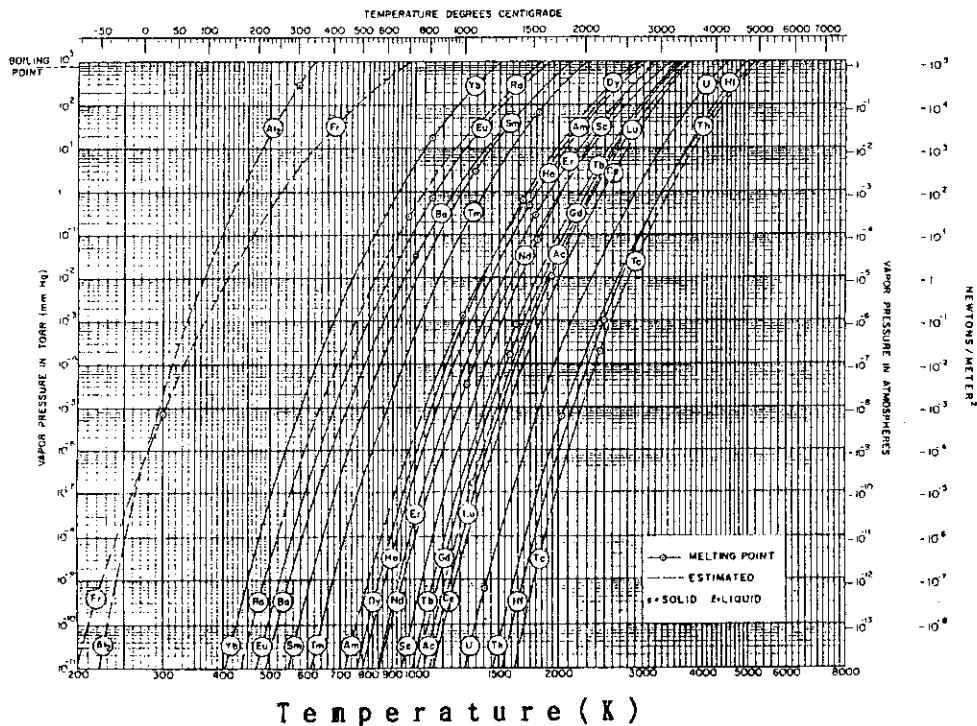


Fig.4.1 Vapor pressure data for some elements

[R.E.Honig and D.A.Kramer⁽³⁾]

4. 1. 2 反応後の標的蒸気の処理

蒸気が融点より低い固体表面に衝突すれば高い確率で蒸着される。これがレンズ、光学機器、検出装置などに悪影響を与える。そのために、標的蒸気が飛び散って起こる蒸着をできる限り抑制しなければならない。その手法として考えられるものは、受動的には壁で遮る、能動的には冷たいものに付着させることが挙げられる。実験装置が十分に大きく、複雑になることで支障がないのならば、液体窒素などで冷却した壁に付着させるのが良い。また、局所的な冷却の手段としてペルティエ素子による冷却も検討したが、供給する電流による磁場の発生、冷却面とは逆の面の発熱などから適していないと判断された (Table 4. 1)。

以上のことを考慮に入れても、装置の簡略化を優先して、ヒーターとは熱的に遮断された壁で囲むことによつて、その表面に蒸着させて蒸気の散乱を防ぐことにした。

Table 4. 1 Ba蒸気の処理

種類	手法	装置	欠点
受動的	物で遮断する	板	効力が小さい
能動的	冷却物に付着させる	液体窒素 ペルティエ素子	装置が大がかり 電流による磁場

4. 1. 3 磁場の抑制

イ) 外部磁場の抑制

外部からの地球磁場、電気配線、その他の磁気漏れなどによって生じる磁場を抑制しなければならない。 μ -メタルなどを用いて遮蔽するという受動的な方法と、装置全体を覆う大きなヘルムホルツ・コイルを用いて能動的に相殺するという方法がある。複雑な要因によって生じる磁場の影響は定量的に予測するのが困難なために、ここでも基本的に受動的な方法、そして必要に応じて能動的な方法を行うものとする。

ロ) 熱源への供給電流によって生じる磁場の抑制

熱源に電流を供給するために、その電流から磁場を生じる。この磁場を低減するために以下の2つの方法を用いた。

1) 2芯線を用いて電流を往復させ磁場を相殺させる。

2芯のシース線でヒーターが往復しているものを用いる。

2) 電流と衝突領域の間に磁力線を吸収させる金属を入れる。

電流と衝突領域の間の温度が、500℃以上になることがあるので μ -メタルを用いることはできない。しかし、同時に磁性体の磁性が無くなり磁場の遮断の効果を示すので磁性金属を用いることができる。

まとめると、Table 4. 2 のようになる。

Table 4. 2 磁場の発生とその制御

磁場の発生源	装置	手法
外部磁場	μ -メタル ヘルムホルツ・コイル	遮断 相殺
ヒーターの電流による 内部磁場	2芯線 磁性体(キュリー温度以上)	相殺 遮断

4. 1. 4 生成するBa蒸気の量の制御

標的气体として、Baの蒸気を発生させることを考える。生成された蒸気は、その発生量を計測して制御しなければならない。観測する方法としては次の方法が挙げられる。

1) 表面電離法を用いる。

蒸気があたるところに極板をおき、表面電離によって生成するイオンをプローブによって検出する。生成量の相対値や定性的な評価をするには簡便な方法である⁽⁴⁾。

表面電離法を用いた中性原子の検出方法の例は、Fig. 4. 2 のようになる。

円筒状のコレクターの軸に沿って金属線（白金、タンタル、タングステンなど）を張る。その金属線にはコレクターに応じた数Vの直流電圧をかけた状態にしながら加熱する。コレクターは非常に大きな抵抗値の抵抗介して設置される。抵抗を流れるイオン電流によって電圧が生じ内部抵抗の非常に大きな電圧計によって測定される。

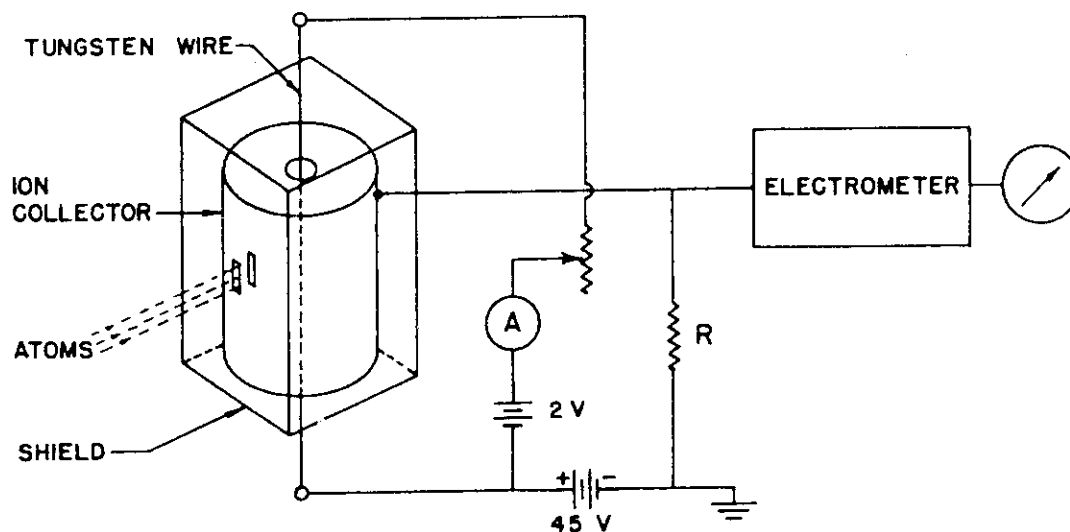


Fig.4.2 Surface ionizer [H.Lew⁽⁴⁾]

2) レーザー共鳴吸収法をもちいる。

レーザー共鳴吸収法による観測は、蒸気を通るところにレーザーを通過させて、その吸収を観測する方法である。原理的には非常に精密な計測も可能であるが、高分解分光のためには大規模で複雑な実験装置が必要となる。

レーザーを用いる方法は、非常に多くの方法があるが、本研究で有効な方法として線形吸収レーザー分光の手法が挙げられる⁽⁵⁾。その実験系をFig. 4. 3に示す。

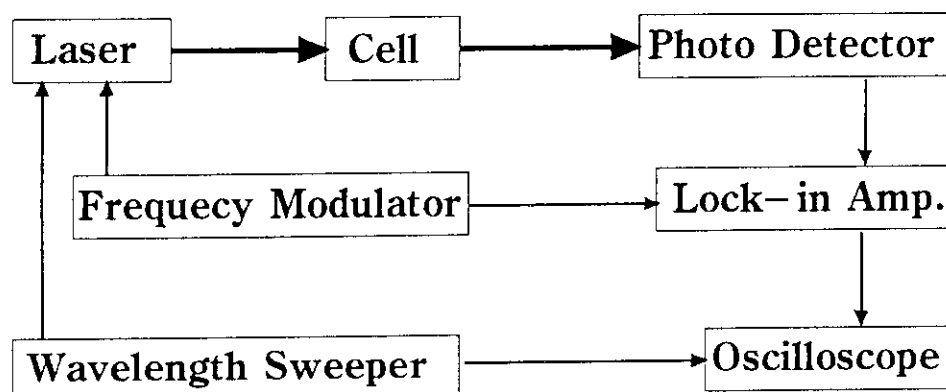


Fig.4.3 Laser spectrosopy of frequency modulation

セル(Cell)内の原子に波長可変レーザーを入射し、波長を波長掃引器(Wavelength sweeper)によって掃引すれば透過出力で吸収スペクトルが観測される。セルの光路長が長い、セル内の圧力が大きい、原子の吸収係数が大きいなどの理由で十分に吸収が大きくなる場合は、周波数変調器(frequency modulator)と、ロックイン増幅器(lock-in amp.)は必要ない。しかし、小さな場合はレーザー(Laser)の発振波長を周波数変調器で低周波で周波数変調し、それに同期して変化する検波出力の成分だけをロックイン増幅器で観測することによって高感度で検出することができる。

3) 蒸着させて測定する

気体状で測定するのではなく、ものに蒸着させてその変化を測定する。手法として、

イ) 天秤ばかりで質量の変化を測定する。

ロ) 水晶振動子膜厚計を用いる。

などが挙げられる。

ここで、Baの蒸発の時間見積もりより(4. 3. 1参照)、20時間で2g蒸発する。そのうちの10%が検出器にかかるとすると、 3×10^{-6} g/secである。この値を用いると、天秤ばかりでは即時的な測定はできないが、水晶振動子膜厚計を用いれば十分に測定が行なえる。

4) 温度から推定する。

Baの温度を計測し、蒸気圧曲線Fig. 4. 1⁽³⁾より求める。この方法ではBaの表面の温度が測れれば、非常に正確に蒸気圧を知ることができる。

温度を測定する方法は、何種類かあるが(T a b l e 4. 3)本実験では熱電対を主として用い絶対値の補正用に輻射温度計を用いている。

これは輻射温度計で計測するためには、外から直接見えるところにオープンがなければならぬが、窓(ビューポート)の表面に蒸着されてしまうのでオープンは見えないところに配置されている。熱電対はオープンとの接触の仕方によって多少の変化を生じるので絶対値に誤差が生じる。そこで熱電対を用いて必要に応じて輻射温度計で補正している。

T a b l e 4. 3 オープンの温度計測の手法

種類	方法	長所・短所
熱電対	起電力を測定する	装置が単純 誤差が大きい
測温抵抗体	抵抗値を測定する	比較的単純な装置 導線の抵抗による誤差
輻射温度計	外部から色を見て温度を測定する	直接見えるところは蒸気が飛来する 非接触測定
サーミスター	抵抗値を測定する	装置が単純 温度-抵抗の値が非常に非線形
半導体	電流を一定にして端子電圧の値を測定	高精度・非線形 最大許容温度が低い

4. 2 イオン-Ba蒸気衝突実験系

Baの蒸気を生成し、イオンと衝突するシステムは、Fig. 4. 4のようになる。

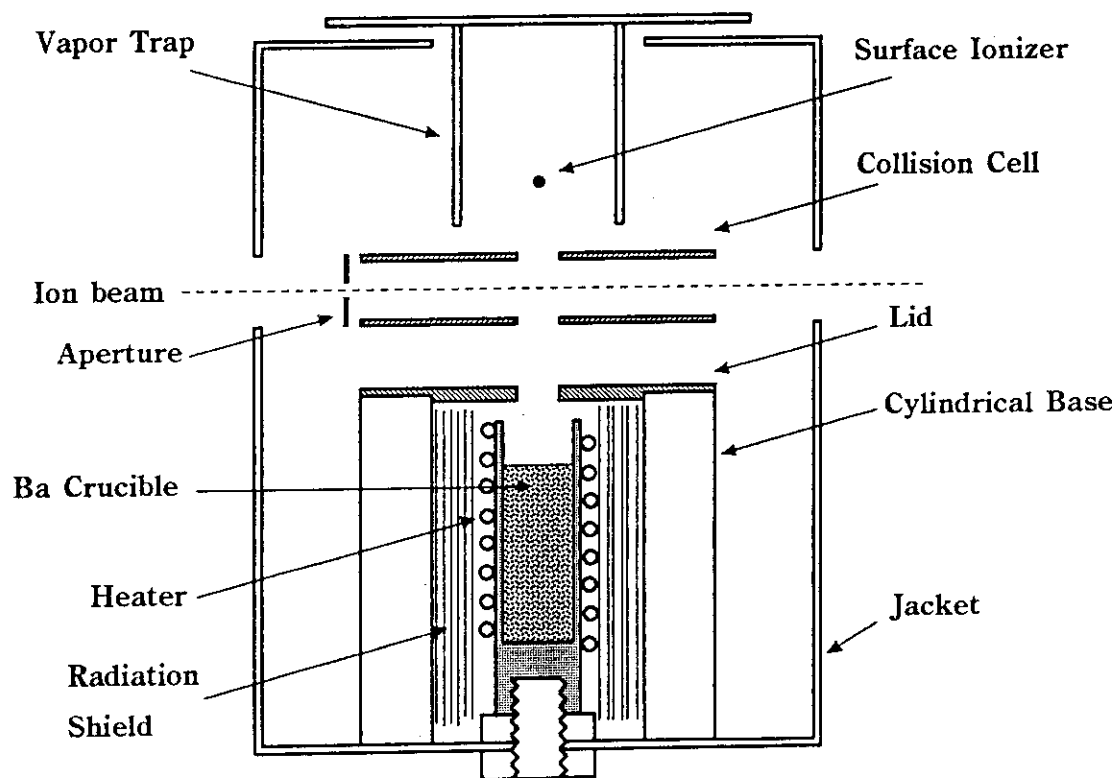


Fig.4.4 Cross section view of Ion-Ba vapor collision system

システムは真空槽の中で背景ガス 10^{-5} Pa 程度の領域で作動される。真空槽の内部には外部磁場の侵入を防ぐために2重の μ -メタル磁気シールドがおかれている。

システムは銅(またはステンレススチール)の被いにつつまれており、Baの蒸気が真空槽内の他の部分に蒸着して悪影響を与えることを防止している。

Baの坩堝(Ba Crucible)は、円柱状のステンレス鋼をくり抜いたものを用いている。坩堝のまわりには、ステンレスの筒を挟んでコイル状のヒーター(Heater)が巻かれている。筒は、ヒーターを坩堝に直接巻き付けておくと付着して取り外すことができなくなることを防止するために付けられている。ヒーターは、2芯のシースヒーターを用いられている。2芯のために発熱体であるニッケルクロム線が平行して入っているので、電流を逆向きに流すことにより電磁誘導によって生じる磁場が相殺される。ヒーターの外部にはTaの熱シールド(Radiation Shield)がロール状に10巻き以上巻かれている。

このオープン系では、白壁ら⁽⁶⁾の装置の技術を参考にしている。

ヒーターと坩堝の間の筒には、クロメル・アルメル熱電対がつけられてる。この熱電対によってオープンの温度を観測することができる。クロメル・アルメル熱電対を用いたのは、1000°C程度までの温度が観測でき、起電力-温度特性がほぼ線形であるためである。(Fig. 4. 5)

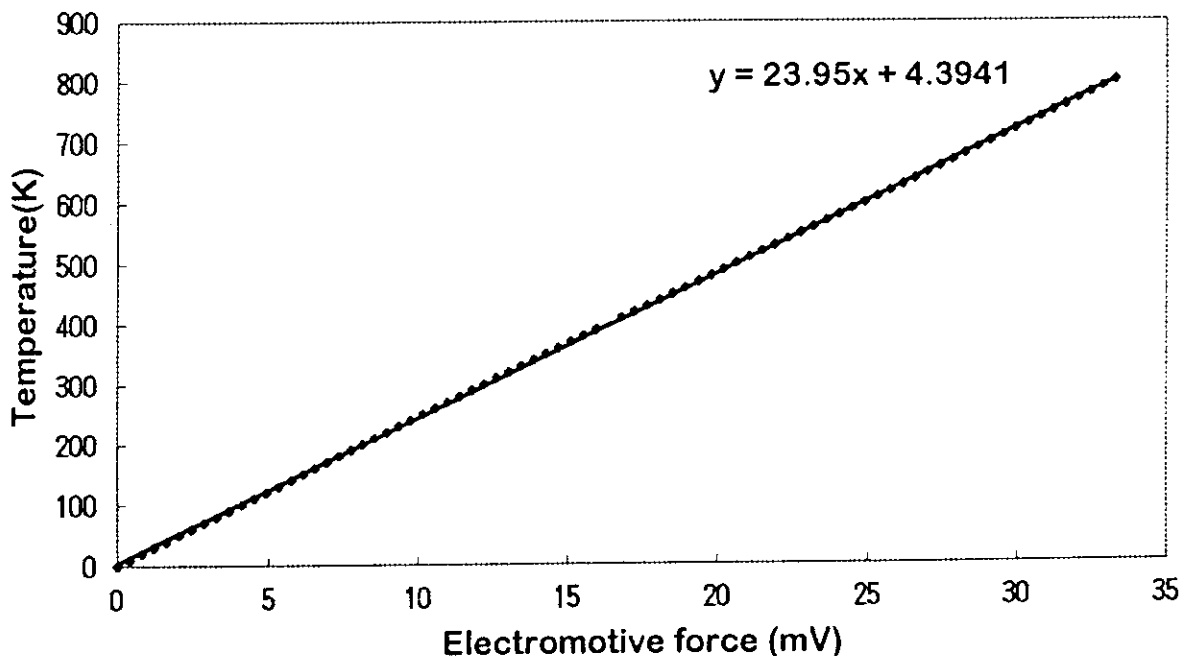


Fig.4.5 Chromel vs. Alumel Thermocouples

クロメル・アルメル熱電対の定温接点は真空槽上部の電流導入端子(ハーメチックシール)でになっている。そのために起電力から読みとれる温度はこの電流導入端子との差である。よって、オープンの温度 T_{open} (°C) は、

$$T_{open} = T_x + 24V + 4 \quad (4.1)$$

T_x : 真空槽上部の温度 (°C)

V : 熱電対の起電力 (mV)

と見積もることができる。

円筒台(Cylindrical Base)には、蓋(Lid)がされ、碍子を介して衝突セル(Collisional Cell)がついている。蓋はヒーターで生じた磁場を通さない金属でできている。衝突セルは、ほかの部分とは電氣的に絶縁されていて電位を任意に変えられるようになっている。セルのイオン上流方向には、アパーチャーがついており、イオンビームの大きさを絞るとともに、電流値を観測することによりイオンビームの軸合わせのモニターに用いることができる。アパーチャーの穴の直径は、2～5 mm程度のもをもちいる。大きくすると信号の量は増加するが電子のスペクトルの分解能が下がるので、信号のS/N比との兼ね合いによって最適のものを用いる。

台とセルの間には、 $\phi 10$ 程度のレーザービームを通せるように間隔が開いている。

Baは、オープン($\phi 10$)からでて、蓋の穴($\phi 5$)を通過し、衝突セル($\phi 5$)にはいる。衝突セルから出たBaはトラップに達する。トラップは能動的には冷却していないが、ヒーターに比べて十分低温であれば大部分はトラップされる。ここで、表面電離法で生成量をモニターする事もできる。

4. 3 実験装置の性能の評価

4. 3. 1 Baの寿命の見積もり

試料Baの寿命を見積もる。

単位時間当たり単位面積から蒸発する質量(蒸発速度) a_v は、

$$a_v \sim 4.37 \cdot P_s \cdot \sqrt{\frac{M}{T}} \quad (4.2)$$

ただし、 a_v ($\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$) : 理想的な条件での単位面積当たりの蒸発速度

P_s (Pa) : 温度 T (K) における飽和蒸気圧

M : 蒸気原子の原子量(分子のときは蒸気量)

T (K) : 蒸発表面の絶対温度

である。

ここで、蒸発表面は半径 r (mm) の真円、試料の質量 m (g) として、Ba試料を用いたときの具体的な値をいれる。

温度 $T = 900 \text{ K}$ のとき、飽和蒸気圧 $P_s = 0.188 \text{ Pa}$ (Fig. 4.1より)、

坩堝に入れるBaの質量 $m = 2.0 \text{ g}$ 、Baの原子量 $M = 137.33$

坩堝の内径 $r = 5.0 \text{ mm}$ 、

として、寿命 t (h) は、

$$t = 22 \cdot \left(\frac{m}{2.0 \text{ g}} \right) \left(\frac{P_s}{0.19 \text{ Pa}} \right)^{-1} \left(\frac{M}{137.33} \right)^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{T}{900 \text{ K}} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{r}{5.0 \text{ mm}} \right)^{-2} \quad (4.3)$$

となる。

4. 3. 2 オープンの加熱・冷却

システム自体の熱伝導は複雑なものであるが、単純化して考える。

ヒーターによってオープンを加熱したときの加熱・冷却曲線はFig. 4. 6のようになる。横軸は時間を示す。縦軸はクロメル・アルメル熱電対によって生じた起電力で、熱電対は坩堝に接しているシールドにつけられている。熱電対の定温接点は真空槽なので室温とみなす。

Fig. 4. 6より、加熱時にも冷却時にも温度は時間に関して対数的に変化していることがわかる。これは、オープン（試料と坩堝）内では熱伝達が速く、外部とはNewtonの冷却の法則「物体の冷却速度は周囲との間の温度差に比例する。」が適応できるからだと考えることができる。すなわち加熱時の飽和温度は、外部の温度・オープンからの熱伝達・外部からの流入熱量で決まる。そして十分に時間が経過すれば熱平衡状態になり温度は一定に保たれる。また経験的に、この熱平衡状態は真空槽内部を大気圧にして試料の交換・ヒーターの巻き直し・シールドの状態の変更などを行うことによって敏感に変化する。

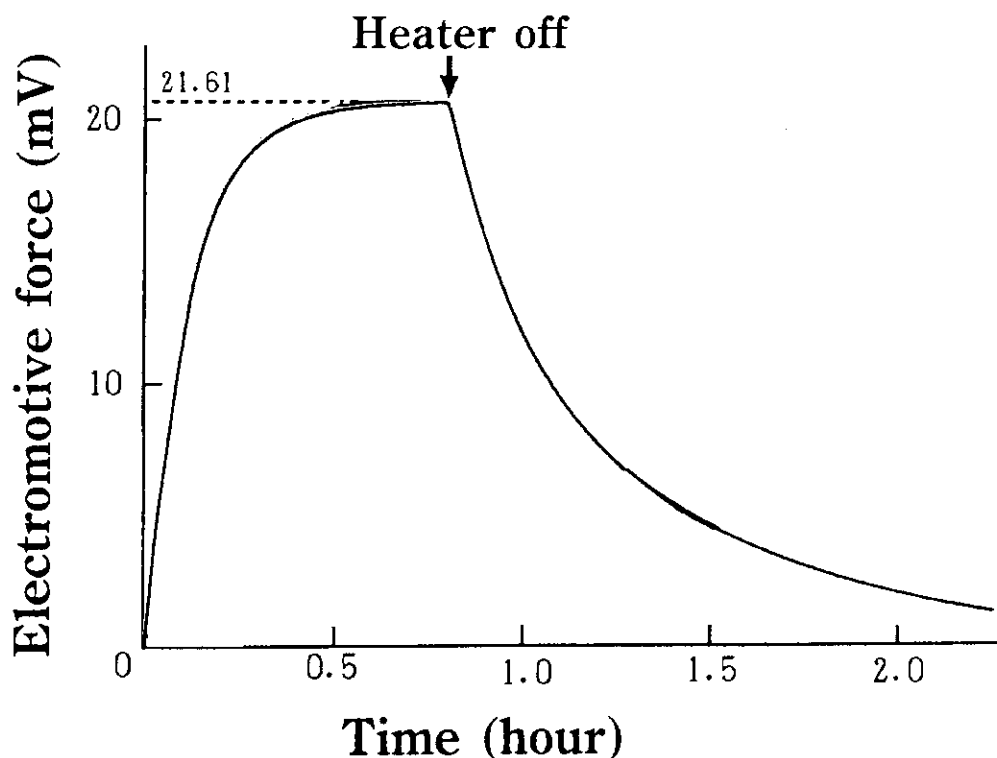


Fig.4.6 Heating and cooling curve of Ba vapor oven

5. 結 論

ECRイオン源で生成したイオンビームをもちいて、イオン-原子の多電子移行衝突をおこない、その相互作用で放出される電子のエネルギースペクトルを 0° 電子分光法を用いて解析する実験システムが開発された。標的原子として気体の原子または分子が用いられるシステムに加えて、蒸気状の原子を標的原子にする画期的なシステムに発展させた。この実験装置によってあらたな組み合わせの、イオン-原子衝突による放出電子分光が行われ、これまで未知であった原子・分子の分野における物理・化学現象が解明されていくと期待される。

謝 辞

本報告を書くにあたって、東京大学原子核研究所関口雅行助教授、電気通信大学レーザー極限技術研究センター大谷俊介教授、上智大学理工学部高柳俊暢助手から多くの助言をいただいたことを感謝いたします。

本実験システムは、上智大学の脇谷研究室（旧鈴木洋研究室）の教員、大学院学生、学部学生の方々の永年の積み重ねが寄与しています。

Baのオープンの製作に関して、明星大学長田哲夫教授から貴重な助言をいただきました。この研究の一部は文部省重点領域研究「多価イオン原子物理学」によっています。

5. 結 論

ECRイオン源で生成したイオンビームをもちいて、イオン-原子の多電子移行衝突をおこない、その相互作用で放出される電子のエネルギースペクトルを 0° 電子分光法を用いて解析する実験システムが開発された。標的原子として気体の原子または分子が用いられるシステムに加えて、蒸気状の原子を標的原子にする画期的なシステムに発展させた。この実験装置によってあらたな組み合わせの、イオン-原子衝突による放出電子分光が行われ、これまで未知であった原子・分子の分野における物理・化学現象が解明されていくと期待される。

謝 辞

本報告を書くにあたって、東京大学原子核研究所関口雅行助教授、電気通信大学レーザー極限技術研究センター大谷俊介教授、上智大学理工学部高柳俊暢助手から多くの助言をいただいたことを感謝いたします。

本実験システムは、上智大学の脇谷研究室（旧鈴木洋研究室）の教員、大学院学生、学部学生の方々の永年の積み重ねが寄与しています。

Baのオープンの製作に関して、明星大学長田哲夫教授から貴重な助言をいただきました。この研究の一部は文部省重点領域研究「多価イオン原子物理学」によっています。

参考文献

第1章

- (1) M. Barat and P. Roncin, J. Phys. B 25, 2205 (1992).
- (2) H. A. Sakaue, Y. Kanai, K. Ohta, M. Kushima, T. Inaba, S. Ohtani, K. Wakiya, H. Suzuki, T. Takayanagi, T. Kambara A. Danjo, M. Yoshino and Y. Awaya: J. Phys. B 23 L401 (1990).

第2章

- (1) K. Okuno: Butsuri 47 285 (1992) [in Japanese].
- (2) For example; Proceedings of 12th International Workshop on ECR Ion Sources (1995).
- (3) P. Mullser, R. Siegel and S. Witkowski: Phys. Rep. C 3 187 (1973).
- (4) R. Geller: Ann. Rev. Nucl. Sci. 40 15(1990).
- (5) S. Kitazawa, K. Okada, T. Nakamura, S. Ohtani and H. Takuma: Jpn. J. Appl. Phys. 32 5 147 (1993).
- (6) V. B. Kutner: Rev. Sci. Instrum 65 1039 (1994).
- (7) M. Sekiguchi, Y. Ohshiro, M. Fujita, T. Yamazaki, Y. Yamashita, Y. Isoya, T. Yamada and A. Kitagawa: Proc. 12th Int. Conf. on Cyclotrons and their Applications, Vancouver, World Scientific, Singapore, pp. 326-329 (1992).
- (8) Y. Yamashita. et al.: to be publish in Proceedings of 12th International Workshop on ECR Ion Sources (1995).
- (9) N. Hayashi et. al.; Proceedings of the 12th symposium on Ion Beam Technology Hosei Univ. p141 (1994).
- (10) Y. Yamazaki et. al.; to be publish in Proceedings of 12th International Workshop on ECR Ion Sources (1995).

第3章

- (1) N. Stolterfort: Phys. Rep. 6 315 (1987).
- (2) K Jost: J. Phys. E 12 1006 (1979).

第4章

- (1) (1) in section 2.
- (2) S. Kitazawa, T. Takayanagi, S. Ohtani and M. Sekiguchi: to be publish in Proceedings of 12th International Workshop on ECR Ion Sources (1995).
- (3) R. E. Honig and D. A. Kramer: RCA Rev. 30 285 (1969).
- (4) H. Lew: "Methods of Experimental Physics", Academic Press, New York, Vol. 4 p393 (1967).
- (5) K. Shimoda: "re-za- bunkou"(Laser spectroscopy), Gakkaishi kankousenta-, (1983) [in Japanese]
- (6) Y. Shirakabe, N. Ikeda, S. Ohkawa, T. Nomura and T. Shinozuka: Nucl. Instrum. and Methods. A337 (1993).