

しきい光電子を用いた Cold Electron Collision 実験手法の開発

黒川学¹, 北島昌史¹, 小田切丈¹, 加藤英俊², 星野正光², 田中大², 伊藤健二³

¹東京工業大学大学院理工学研究科, ²上智大学理工学部, ³物質構造科学研究所

A new experimental technique for Cold Electron Experiment utilizing the threshold photoelectron source

Manabu KUROKAWA¹, Masahi KITAJIMA¹, Takeshi ODAGIRI¹, Hidetoshi KATO²,
Masamitsu HOSHINO², Hiroshi TANAKA², and Kenji ITO³

¹Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, ²Department of Physics, Sophia University,

³Photon Factory, Institute of Material Structure Science

1. はじめに

ラザフォードの散乱公式で有名な Rutherford とその弟子の Geiger, Marsden, は金箔をターゲットとする α 粒子の散乱実験を行い, 原子には原子核が存在することを実証 [1,2] した。この歴史的な散乱実験以来, 電子, 陽子, 中性子, あるいはイオンなどの物理化学的性質のよく分かっている粒子を用いた散乱実験が広範に行われ, 量子力学により記述されるミクロな標的の内部状態や表面構造に関する詳細な情報が明らかにされてきた。なかでも, 電子と原子・分子の衝突は量子力学創成期から散乱問題の代表的なモデルとして, 理論・実験の両面から広く研究されてきた。特に電子-原子・分子衝突においては支配的な相互作用 (クーロン力) が既知であることから, 有限系の少数多体問題における複雑なダイナミクスを精密に検証する場をも提供している。一方, 電子-原子・分子衝突の理解は種々の反応素過程の解明やプラズマ科学, 大気科学, 核融合科学, 放射線作用, などの広範な分野の基礎としても重要である [3]。

電子の衝突・散乱過程では, 電子の衝突エネルギーが低くなると, 電子の de Broglie 波長が長くなることに起因し, 量子力学的効果による特有の現象が現れることが知られている。さらに, 衝突エネルギーが 100 meV 以下となると, 電子の de Broglie 波長は数十 Å 以上となり原子・分子のサイズよりもはるかに大きくなっていく。このような状況での電子衝突は Cold Electron Collision と呼ばれており特異的な物理現象の発現が期待され大変興味深い [3,4]。

さて, 原子・分子を標的とする電子衝突実験では, エネルギーの揃った電子ビームが必要であるが, これまでは熱フィラメントからの熱電子が電子源として一般的に用いられてきた。熱フィラメントからの数百 meV 程度のエネルギー拡がりのある熱電子を数十 eV のエネルギーで引き出し, エネルギー選別器を用いて数十 meV 程度のエネルギー幅とした後, 電子レンズで加減速し任意のエネルギーの電子ビームを得る。この手法により, 1 eV 以上のエネルギーで, エネルギー幅 20 meV 程度の電子ビームを安定に生成することが可能となる。しかし, 電子エネルギーを下げていくと, 減速に伴うビームの発散が大きくなるだけでなく, 空間電荷効果が増大する。このため, 熱電子源を用いた場合, 衝突エネルギー 100 meV 以下で十分な強度を

保ちながら安定した電子ビームを生成することは困難となる [3,5]。さらに, ガス標的を用いる原子・分子実験では熱フィラメント周辺を超高真空に保つことが出来ないこと, 大強度の長焦点のビームが必要なことからエネルギー幅 10 meV 以下の電子ビームを生成することは非常に困難である。現在, 唯一, スイスのグループが熱電子源を用いてエネルギー分解能 10 meV を達成している [6]。

熱フィラメントを用いる従来の手法に代わる方法として, 原子の光イオン化に伴い生成する光電子を電子源とする手法が開発されいくつかのグループがこの手法を用いて高分解能の電子衝突実験を成功させた [3,5,7]。光電子のエネルギー拡がり, イオン化に用いる光のエネルギー幅に依存するため, 高単色性光源を用いることで非常に高い分解能の電子ビームの生成が可能となることを利用したのである。さらに, この光電子を電子源とする手法を Cold Electron Collision 実験へ応用したのが Field のグループ [4,8] である。彼らは, 放射光を光源とした光電子を電子源とする電子ビーム生成手法の開発に 980 年代より取り組み, 1990 年代末に ASTRID (デンマークの電子蓄積リング) の挿入光源ビームラインに低エネルギー電子衝突実験専用の分光器と実験装置を設置することで, Cold Electron Collision 実験を達成した。

ここで, 高分解能電子ビームを生成するためには電子ビームのエネルギー幅と電子ビーム強度の相反関係に注意を払うことが必要となる。電子ビームのエネルギー幅は, 光のエネルギー分解能による光電子のエネルギー分布だけでなく, 光イオン化に用いる光のスポットサイズと電子捕集のために光イオン化領域に印加した電位勾配の積にも依存する。光電子を効率よく捕集するためにはある程度の電位勾配が必要であるため, 高分解能の電子ビームを生成するためには, 高い光エネルギー分解能と, 非常に小さな光のスポットサイズを両立しなければならない。しかし, 光のスポットサイズを小さくすると, ビーム強度が小さくなるだけでなく実験装置に対する光軸の調整が非常に難しくなるなど, ビームタイムの中での実験が極めて困難になる。また, 電子ビーム強度を大きくするために光の強度を大きくするとスポットサイズが小さいために, 光イオン化領域での空間電荷効果が大きくなり, そのことにより電子ビームのエネルギー幅が広がってしまう。

そこで我々は、電子ビームのエネルギー幅と電子ビーム強度の相反関係を解決するための新しい電子ビーム生成手法を開発し、Cold Electron Collision 領域から数十 eV までの広範なエネルギー領域での高分解能実験を可能にする電子衝突実験装置を新たに製作した。本手法の特徴は、電子ビームの電子源として、エネルギーがほぼゼロである“しきい光電子”に着目し、“浸み出し電場”を用いて非常に弱い捕集電場でしきい光電子を捕集することである。次項以降で、しきい光電子と浸み出し電場を利用した電子ビーム生成方法の原理的な説明、実験装置と結果の一例について紹介する [9]。

2. しきい光電子と浸み出し電場を用いた電子源

本研究では、しきい光電子を電子源として効果的に捕集するために、Cvejanović Read により確立され、しきい電子スペクトル測定に用いられる“浸み出し電場法” [10] を応用した。この浸み出し電場とは電子レンズのつくる電場が、グラウンドと等しい電位にある光イオン化セルの電子捕集用のアパーチャーを超えて、光イオン化領域にしみ出す電場である (Fig. 1)。この浸み出し電場により光イオン化領域から電子レンズに向かって非常に緩いポテンシャル勾配が形成され、エネルギーがほぼゼロのしきい光電子は立体角 $4\pi sr$ という高い効率でポテンシャル勾配に沿って静電レンズ系へ取り込まれる。一方、エネルギーを持って生成した光電子は、その運動方向をあまり変えられず、静電レンズ方向に放出されたもの以外は捕集されない。すなわち、浸み出し電場法ではエネルギー選択的に光電子を捕集することになる。このエネルギー選択性は高く、数 meV 以上のエネルギーの光電子はほとんど捕集されない。

さて、しきい光電子のみを捕集するための捕集電場は非常に弱いため、電子ビームのエネルギー幅に寄与する光のスポットサイズと捕集電場の勾配の積を、スポットサイズをそのままにして、小さくすることが出来る。このため、放射光強度を犠牲にすることなく、高分解能の電子ビーム

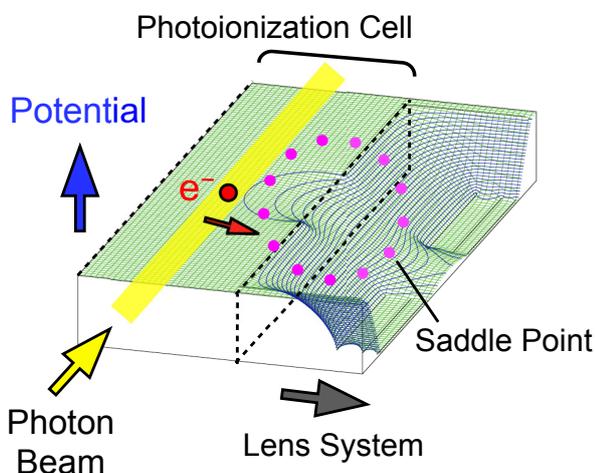


Figure 1
Schematic view of the potential surface produced in the photoionization cell by field penetration.

生成が可能である。また、空間電荷効果を小さく抑えられるため、従来法よりも強度の限界がはるかに大きくなることも特徴である。さらに、エネルギーがほぼゼロのしきい光電子のみを捕集するため、エミッタンスの小さな電子ビームを実現できる。このため、電子ビームを減速した際に生じる電子ビームの広がり角を抑えることができ、結果的に減速の際の電子ビームの発散に伴う電子ビーム強度のロスを低減できることが期待される。

3. 実験装置

実験装置の概略を Fig. 2 に示す。電子衝突実験装置は光イオン化セル、静電レンズ系、衝突セル、電子検出器から成り、これらを二重の磁気シールド内に設置して、地磁気の影響を遮断している。また光イオン化セル後方には光子エネルギーをモニターするための Ar⁺ イオン検出器であるマイクロチャンネルプレートと放射光強度をモニターするための Au メッシュを設置しており、これら全体を真空チェンバー内に収納している。実験は、PF リングの高分解能真空紫外分光ビームライン BL-20A で行った。

現在、本研究グループでは、Ar 原子の第一イオン化ポテンシャルである Ar⁺ 2p_{3/2} から生成するしきい光電子を電子源としている。原理的には、光イオン化に用いる粒子とそのイオン化過程は自由に組み合わせることが可能であるが、イオン化に用いる粒子の光イオン化断面積や各ビームラインの波長強度を考慮し、BL-20A を用いて、Ar 原子の Ar⁺ 2p_{3/2} へのイオン化で生成する光電子を選択した。光のエネルギー分解能は 2.7 meV、スポットサイズは 1 mm とした。

Fig. 3 には、電子ビームの様子と実験装置の断面図と共に示す。Ar の第一イオン化ポテンシャルにエネルギー単色化された放射光により生成したしきい光電子は、浸み出し電場により形成される浅いポテンシャル勾配によって静電レンズ系へと送り込まれる。その後、1st レンズ系による電子ビームへ成形と衝突エネルギーの調整の後、標的粒子で充填された衝突セルへと導かれる。標的粒子と衝突す

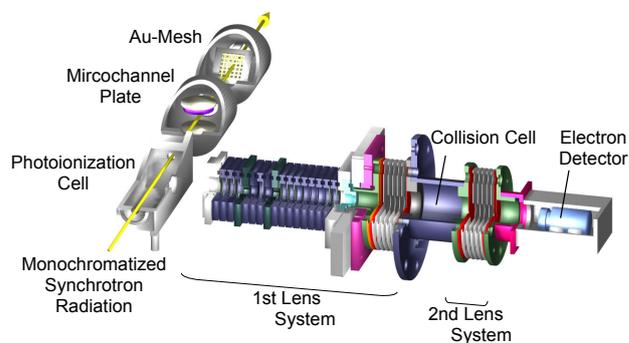


Figure 2
Overview of the present experimental system. The setup consists of an electron scattering apparatus, photoionization cell filled with Ar atoms for the photoelectron source, a microchannel plate for photoion detection and an Au-mesh for the monitor of the flux of the monochromatized synchrotron radiation. The energy of the monochromatized synchrotron radiation is set to the first ionization potential of Ar 15.760 eV.

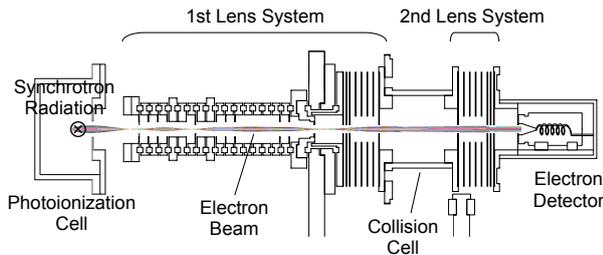


Figure 3 Cross section of the apparatus used in the measurement of the total electron scattering cross sections. The photoelectrons are collected by the penetrating field from the 1st lens system and formed into a beam. After tuning the energy of the electron beam, the beam is focused on the collision cell filled with target gas by the 1st lens system. The transmitted electrons are accelerated by the 2nd lens system and detected by a channel electron multiplier. The trajectory of the electron beam calculated at collision energy of 100 meV is also shown.

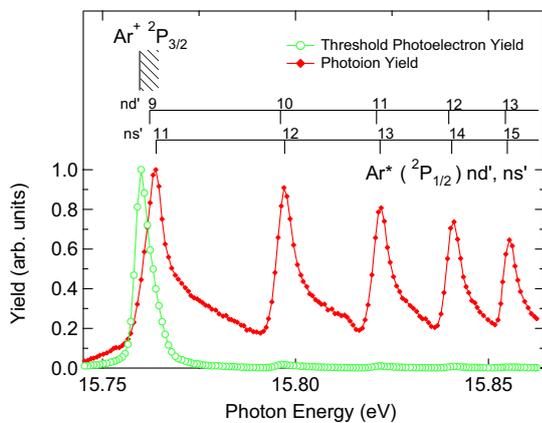


Figure 4 Threshold photoelectron yield spectrum and photoion yield of Ar spectrum obtained by the present setup.

ることなく衝突セルを透過した電子は 2nd レンズ系で輸送され、衝突セルの下流にある電子検出器により検出される。透過電子の強度を、衝突セル中に標的粒子がある場合と無い場合の測定を行い、Lambert - Beer 則に基づく次式で衝突エネルギー E における電子衝突全断面積 $\sigma(E)$ を得る。

$$I(E) = I_0(E) \exp(-nL\sigma(E)) \quad (1)$$

ここで、 $I(E)$ は標的があるときの透過電子強度、 $I_0(E)$ は標的がないときの透過電子強度、 n は衝突セル中の標的の密度、 L は衝突セルの長さを表す。

実験結果に移る前に、しきい光電子に対する本実験装置の高い選択性を示す例として、しきい光電子と Ar^+ の収量スペクトルを Fig. 4 に示す。しきい光電子スペクトルは Ar のイオン化しきい値 $Ar^+ 2P_{3/2}$ にピークを持つが、 Ar の Rydberg 系列 $Ar^* 2P_{1/2} ns'$ の自動イオン化から生成した光電子のうち、 $n \geq 12$ の Rydberg 系列からの光電子はしきい光電子スペクトル上には現れていない。また $Ar^* 2P_{1/2} 11s'$ の自動イオン化により生成する 4 meV のエネルギーを持つ光電子に対する透過率は 10% 程度である。ここで示す

様に、本研究で開発した手法では、放射光のエネルギー幅を広くしても電子ビームのエネルギー幅は数 meV 以上には広がらないことが大きな特徴である。実験では放射光のエネルギー幅を 2.7 meV としたが、これはむしろ電子検出器の焼損を避ける目的で放射光の光量を制限するために分光器のスリット幅を小さくしたためである。

4. Kr の電子衝突全断面積

本研究により得られた Cold Electron Collision 領域から 20 eV おける Kr の電子衝突全断面積を Fig. 5 に示す。Kr の電子衝突全断面積には、Ramsauer - Townsend 極小として知られる、量子力学的効果により出現する衝突断面積の極小 [11] が約 700 meV に現れ、それより小さな衝突エネルギー領域では、衝突エネルギーの減少とともに、断面積値が急激に大きくなるのが分かる。200 meV 以上では多くの実験結果が報告されており [13-15]、我々の結果もよく一致している。一方、200 meV 以下では、わずかに Gus'kov らの報告 [16] があるが、彼らの報告値は 200 meV 以上のエネルギー領域において他の実験結果と異なっており、信頼性が低い。本研究の結果から、Cold Electron Collision 領域での断面積の増大は 30 meV で $17 \times 10^{-20} m^2$ に達することが分かった。Ar, Xe についても、Cold Electron Collision 領域における電子衝突全断面積は Gus'kov らの報告があるのみであり、このことは Cold Electron Collision 領域では、希ガスの様な基本的な系であっても、精確な電子衝突全断面積が知られていないことを示している。

Fig. 6 には、本研究ではじめて観測に成功した、電子衝突全断面積上に現れる $Kr^- (4p^5 5s^2 2P_{3/2}, 2P_{1/2})$ Feshbach 共鳴に起因する構造を示した。この共鳴のプロセスは以下の通りである。入射電子が Kr と衝突し、Kr の 4p 電子を一つ 5s 軌道に励起した際に、入射電子がエネルギーを失い標的 Kr の 5s 軌道に捕捉され、一時的に負イオンの励起状態が形成される。この時、4p 軌道に残された不対電子の

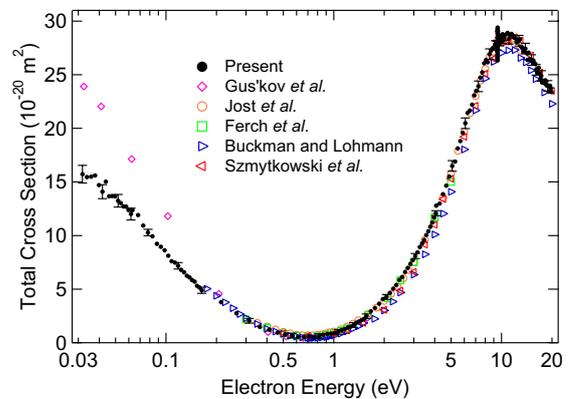


Figure 5 Total electron scattering cross section of krypton. ● present results. Also shown are experimental results of Gus'kov et al. [19] (◇), Jost et al. [15] (○), Ferch et al. [16] (□), Buckman and Lohmann [17] (▶) and Szymtkowski et al. [18] (◀).

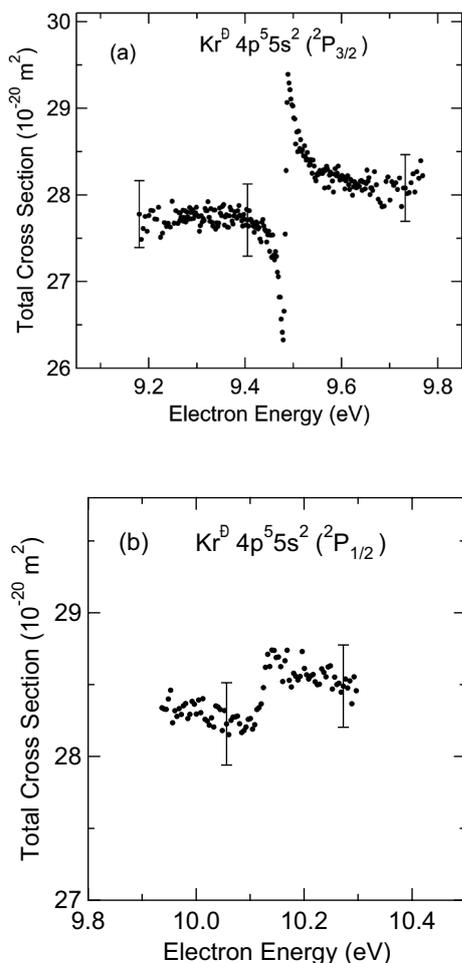


Figure 6
Total cross sections of electron scattering from krypton near the $\text{Kr}^-(4p^5 5s^2 \ ^2P_{3/2}, \ ^2P_{1/2})$ Feshbach resonances.

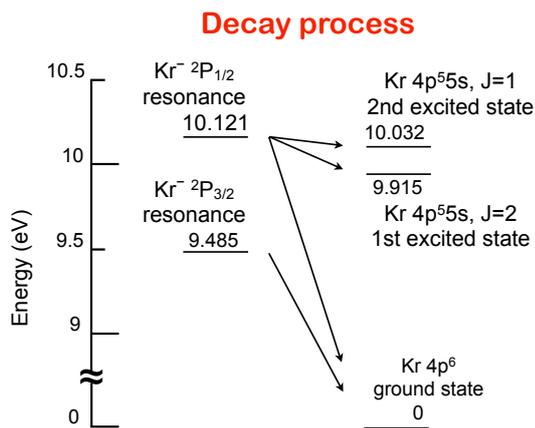


Figure 7
Scheme for the decay process of $\text{Kr}^-(4p^5 5s^2 \ ^2P_{3/2}, \ ^2P_{1/2})$ Feshbach resonances. The $\text{Kr}^-(^2P_{3/2})$ resonance decays into the ground state of Kr, that is elastic scattering, while the $\text{Kr}^-(^2P_{1/2})$ resonance into not only the ground state but also the first and the second excited state of Kr.

スピンに対応して、共鳴状態が $\text{Kr}^-(^2P_{3/2})$ 共鳴と $\text{Kr}^-(^2P_{1/2})$ 共鳴に分裂する。生成した $\text{Kr}^-(^2P_{3/2})$ 共鳴は、最終的に、入射電子と同じエネルギーを持った散乱電子が放出され基底状態の Kr 原子が残される。これは $\text{Kr}^-(^2P_{3/2})$ 共鳴が出現する

共鳴エネルギー $E = 9.514 \text{ eV}$ が Kr の第一励起状態 $\text{Kr } 4p^5 5s (J=2)$ の励起エネルギー $E = 9.915 \text{ eV}$ よりも低く、弾性散乱のみが共鳴の崩壊チャンネルとなるためである (Fig. 7)。一方、 $\text{Kr}^-(^2P_{1/2})$ 共鳴状態は Kr の第二励起 $\text{Kr } 4p^5 5s (J=1)$ の励起エネルギー $E = 10.032 \text{ eV}$ よりも高いため、弾性散乱とこれら 2 種類の励起状態を生成する非弾性散乱の 3 つのチャンネルで崩壊していく。この崩壊チャンネルの違いに対応して、二つの共鳴の寿命が大きく異なることが Fig. 6 からも分かる。

5. まとめ

本稿では、本研究グループにより開発したしきい光電子を電子源とする Cold Electron Collision 実験装置の詳細と、これを用いた Kr 原子の電子衝突全断面積測定の結果を紹介した。そこでは、浸み出し電場によりしきい光電子を選択的に電子源として用いる本実験方法により、高分解能の超低エネルギー電子ビーム生成が可能であることを示した。また、はじめて Cold Electron Collision 領域での Kr の精確な電子衝突全断面積測定に成功し、さらに全断面積上で Feshbach 共鳴に由来する構造の観測にも成功したことを示した。今後、様々な分子について電子衝突全断面積の測定を行い、Cold Electron Collision の解明を目指したい。また、我々の開発した実験手法は、光イオン化に用いる光のスポットサイズを比較的大きく出来ることから、光の強度を増すことが容易であり、分解能を落とさずにこれまでの手法よりも大強度の電子ビームを生成することが可能である。このため、大強度の電子ビームが必要なために測定が不可能とされていた Cold Electron Collision における電子散乱角度微分断面積測定への応用も目指して研究を進めている。

参考文献

- [1] H. Geiger and E. Marsden, Proc. Roy. Soc. A, **82**, 495 (1909).
- [2] E. Rutherford, Phil. Mag., **21**, 669 (1911).
- [3] 北島昌史, 田中 大, 日本物理学会誌 **64**, 742-751 (2009).
- [4] D. Field, S. L. Lunt and J.-P. Ziesel, Acc. Chem. Res. **34**, 291 (2001).
- [5] H. Hotop, M. A. M. W. Ruf and I. I. Fabrikant, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **49**, 85 (2003).
- [6] M. Allan, Phys. Rev. Lett. **87**, 033201 (2001).
- [7] A. C. Gallagher and G. York, Rev. Sci. Instrum. **45**, 662 (1974).
- [8] S. V. Hoffmann, S. L. Lunt, N. C. Jones, D. Field and J.-P. Ziesel, Rev. Sci. Instrum. **73**, 4157 (2002).
- [9] M. Kurokawa, M. Kitajima, K. Toyoshima, T. Odagiri, H. Kato, H. Kawahara, M. Hoshino, H. Tanaka and K. Ito, to be published in Phys. Rev. A.
- [10] S. Cvejanović and F. H. Read, J. Phys. B **7**, 1180 (1974).
- [11] C. Ramsauer and R. Kollath, Ann. Phys. **66**, 546 (1921).

- [12] K. Jost, P. G. F. Bisling, F. Eschen, M. Felsmann and L. Walther, in *Proceedings of the 13th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, Berlin, 1983*, edited by J. Eichler, W. Fritsch, I. V. Hertel, N. Stolterfoht, and U. Wille (1983), p. 91.
- [13] J. Ferch, F. Simon and G. Strakeljahn, in *Proceedings of the 15th International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions, Brighton, 1987*, edited by J. Geddes, H. B. Gilbody, A. E. Kingston, C. J. Latimer, and H. J. R. Walters (1987), p. 132.
- [14] S. J. Buckman and B. Lohmann, *J. Phys. B* **20**, 5807 (1987).
- [15] C. Szmytkowski, K. Maciąg and G. Karwasz, *Phys. Scr.* **54**, 271 (1996).
- [16] Y. K. Gus'kov, R. V. Savvov and V. A. Slobodyanyuk, *Sov. Phys. -Tech. Phys.* **23**, 167 (1978).

(原稿受付日：2010年10月5日)

著者紹介

黒川 学 Manabu KUROKAWA

東京工業大学理工学研究科化学専攻 博士後期課程3年

〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

TEL & FAX: 03-5734-2725

e-mail: kurokawa.m.aa@m.titech.ac.jp

略歴：2006年東京工業大学理学部化学専攻卒業，2008年東京工業大学理工学研究科化学専攻修士課程修了。

最近の研究：Cold Electron Collision 実験装置の開発による超低エネルギー電子と原子・分子衝突過程の研究。第3回分子科学討論会優秀ポスター賞（2009年）。

趣味：ジョギング

北島昌史 Masashi KITAJIMA

東京工業大学理工学研究科化学専攻 准教授

〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

TEL: 03-5734-3812 FAX: 03-5734-2725

e-mail: mkitajim@chem.titech.ac.jp

最近の研究：放射光および電子線を用いた原子・分子衝突実験

小田切 丈 Takeshi ODAGIRI

東京工業大学理工学研究科化学専攻 助教

〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1

TEL & FAX: 03-5734-2725

e-mail: joe@chem.titech.ac.jp

最近の研究：水素分子の光解離による量子もつれ水素原子対の生成，分子多電子励起状態ダイナミクス，電子-分子衝突。

加藤英俊 Hidetoshi KATO

上智大学理工学部物質生命理工学科 特別研究員

〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

TEL: 03-3238-4227 FAX: 03-3238-3341

e-mail: katou-h@sophia.ac.jp

最近の研究：低エネルギー電子・励起分子衝突における共鳴生成機構の精密定量測定

星野正光 Masamitsu HOSHINO

上智大学理工学部物質生命理工学科 准教授

〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

TEL: 03-3238-4227 FAX: 03-3238-3341

e-mail: masami-h@sophia.ac.jp

最近の研究：低エネルギー電子衝撃による解離性電子付着の研究

田中 大 Hiroshi TANAKA

上智大学理工学部物質生命理工学科 教授

〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

TEL: 03-3238-3472 FAX: 03-3238-3341

e-mail: h_tanaka@sophia.ac.jp

最近の研究：低エネルギー電子分光

伊藤健二 Kenji ITO

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 教授

〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

TEL: 029-864-5644 FAX: 029-864-2801

e-mail: kenji.ito@kek.jp