

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 1 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21350008

研究課題名（和文） 多値イオン・固体表面反応における放出電子の研究

研究課題名（英文） Study of electron emission in the reaction of highly charged ions with solid surface

研究代表者

山田 千樫 (YAMADA CHIKASHI)

電気通信大学・名誉教授

研究者番号：70037266

研究成果の概要（和文）：1 個の多値イオン（原子から多数の電子をはぎ取ったもの）が固体表面と反応（衝突）すると、その価数以上、数百個もの電子を放出することが知られている。その電子のスピン（自転の方向と考えてよい）が、一定程度にそろっている場合がある。それをスピン偏極という。その様子を調べるためのスピン偏極計をすでに製作していたが、それを更に校正するためのスピン偏極電子線源を設計、製作した。

研究成果の概要（英文）：

It is well known that a highly charged ion, that is an atom deprived of many electrons, causes emission of many electrons in the reaction (collision) with solid surfaces. The number of emitted electrons exceeds well beyond the charge number of highly charged ions. In some cases, the electrons are spin-polarized, which means that the spin (associated as the direction of the axis of spinning top) is aligned in a certain direction. To investigate this phenomenon, we have already built a spin polarimeter. In this study we designed and constructed a separate polarized electron beam source for the purpose of calibrating the polarimeter.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2010年度	7,800,000	2,340,000	10,140,000
2011年度	2,700,000	810,000	3,510,000
年度			
年度			
総計	14,100,000	4,230,000	18,330,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：多価イオン・2次電子・固体表面・スピン偏極

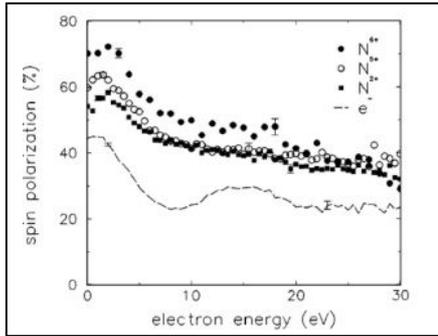
1. 研究開始当初の背景

(1) スピンの重要性

多価イオンは原子から電子を多数はぎ取ったイオンであるので、大きなポテンシャルエネルギーを持つ。固体表面とはそれゆえ特異な反応を起こし結果として固体表面上に“ナ

ノ”構造を形成することがわかってきた。そこに至る過程は未だよく解明されていない。一方ではこの反応において多数の電子を（真空中に）放出することが知られている。したがって反応の全容を解明する一つの方向として、放出電子の特徴をなるべくよく調べる

ことが重要と思われた。2次電子の特性としては、放出確率、エネルギー分布、放出角度分布などが考えられるが、それらはすでに世界中で多くの研究が進行中であるため、本研究では特に電子のスピンに注目した。Pfandzellerらにより2次電子のスピンについて興味深い事実が報告された (PRL 86, 2001)。磁化したニッケルに多価イオンを当てたとき、2次電子は強く偏極し、多価イオンの価数が高いほど、電子エネルギーが小さいほど偏極度が大きいということである。



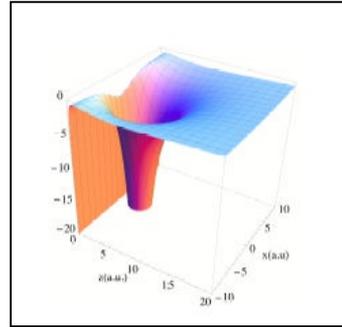
きわめて単純に解釈すればスピンのそろった磁性体フェルミ面近傍の電子を多価イオンが吸い上げそのままスピンを変えずに2次電子として放出したと考えて良さそうである。2次電子放出過程はオージェ過程であるとすればスピンを反転させる作用はないからである。しかしながら振り返ってよく考えてみるといくつかの疑問が生まれてくる。価数依存性をもたらすものは何か？もっと高価数になったら偏極度は100%になるのか？逆に偏極度が100%にならない機構は何か？磁性体でないターゲットでは全く起こらない現象なのか？多価イオン自体に残す影響はないのか？（高スピン状態の中空原子生成の可能性？）

## (2) 多価イオン研究

私たちは“Tokyo electronbeam ion trap (EBIT)”とよばれる装置を有し、それは世界でも数少ない、高価数多価イオンを作ることができる装置である。Knudsenセルを設置したことによりほとんどすべての元素の多価イオンを生成ししかもビームラインが接続され、任意の価数のイオンを取り出して標的にあてることができる。

これは世界でも唯一と言ってよい機能である。古典的障壁乗り越えモデルによれば、固体(金属)表面に近づいた多価イオンは自身の正電荷と固体中に生じる鏡映電荷により次図のようなポテンシャルを持ち、固体との間に「鞍点」を生じる。鞍点はイオンが近づくにつれて真空準位からの深さを増していく。それが固体のフェルミ面に一致した瞬間から固体から電子が多価イオンに流れ込み、イオンの高いリドベルグ準位にとらえられる。固体は仕事関数に相当する分だけエネルギーを受けと

る。さらに高励起状態にとらえられた電子は主にオージェ過程を通して脱励起していく。負の束縛エネルギーの電子を受けとったこと



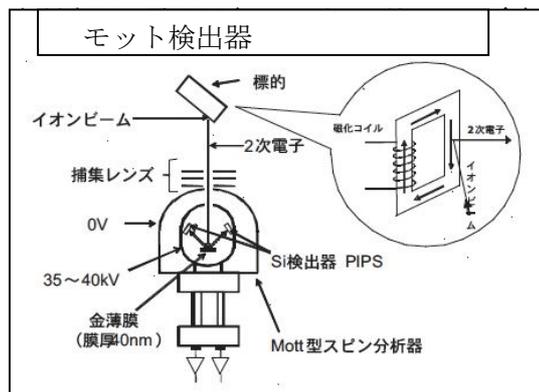
と、正エネルギーのオージェ電子の放出により多価イオンはエネルギーを失う。この過程をくり返しつつ、多価イオンは次々電子を受領しつつオージェ電子を放出し(50 価イオンでトータル150 個程度)、そのうちほぼ半数が固体に衝突し更なる効果を生んでいく。私たちが観測した蛍光物質の表面塗膜からの発光や前年度科研費一般Bの援助により研究したプラズモンからの発光は、このオージェ電子によるものと解釈している。

さてオージェ電子自体の特性としてももちろんその放出確率やエネルギーが問題になるがここで注目したいのがそのスピンである。申請時当初はそれらのパラメーターの測定が世界的にいよいよ盛んになり始めた頃で、注目されたが、スピン状態についてはごく先駆的な実験が行われたのみであった。

## 2. 研究の目的

従って、本研究の目的は多価イオンと固体との反応において生ずる2次電子のスピン偏極度の測定法を確立することとした。

## 3. 研究の方法



2次電子のスピンを計測することを考え、モット型スピン偏極度計を設計製作(研究分担者中村による科研費若手B平成17~18, によりほとんど完了し、本科研費申請時には性能チェック、偏極度の校正をこののみであった。)よって本研究では主に偏極度計の

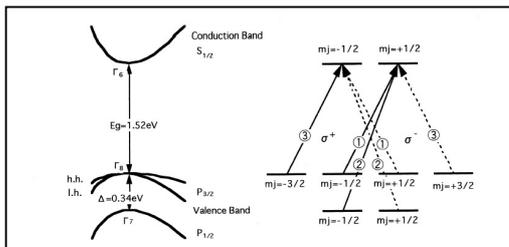
校正のための独立な偏極電子線源の開発を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 原理

砒化ガリウム (GaAs) を用いた偏極電子線源を製作した。その原理は既知で、円偏光のレーザーを GaAs に照射することにより特定の磁気量子数間の遷移を優先的に起こし放出される光電子のスピンをそろえるものである。

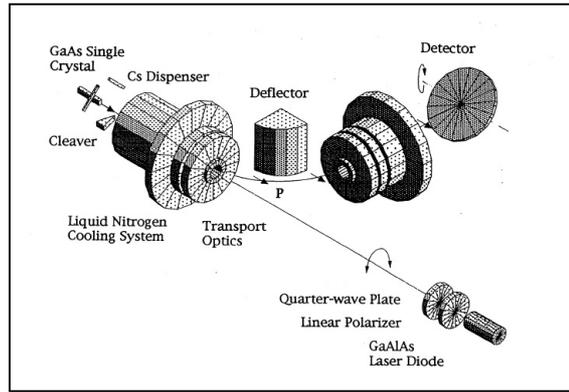
下図は GaAs のバンド図であるが、伝導帯は主に s 電子、荷電子帯は p 電子に由来し左のようにスピ軌道相互作用により 0.34eV ほど分裂し上は  $P_{3/2}$  状態、下は  $P_{1/2}$  状態である。よって 1.57eV 以上、1.91eV 以下のエネルギーの光で励起すれば  $P_{3/2}$  状態からのみの遷移を起こさせることができる。その状況でたとえば右回り円偏光を用いると右の図で伝導帯の  $m_J = -1/2$  状態 (ダウンスピン状態) へは  $m_J = 1/2$  状態 (アップスピン状態) より 3 倍の遷移確率で励起される。丸数字は遷移確率の比をあらわしている。したがって 50% の偏極度をもつ電子が伝導帯にあげられる。



光学的遷移で伝導帯にあげられた電子が真空中に放出されるためには GaAs 表面の仕事関数が負の値になる必要があるため、表面にセシウムおよび酸素を吸着させる。本研究ではまず所定の量を吸着させた後に、ごく少量ずつ常にセシウムを与え続けることにより長時間にわたって劣化することなく電子線を出し続けることができることを見いだした。電子線源自体に吸収電流法による偏極度測定器を装着し独立して偏極度を測定できるようにした。

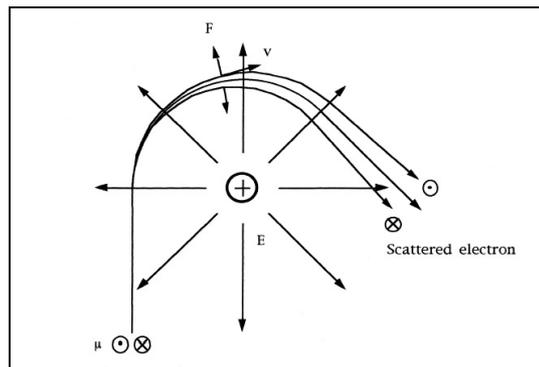
##### (2) 偏極度測定

次の図は偏極電子線源の模式図である。偏極度の測定結果は場合によるが 15~20% であった。理論的極限は 50% であるから、さらなる微調整や実験的習熟が必要であるとおもわれる。今後はモット検出器の校正に利用する予定である。



##### (3) 偏極度測定の方法

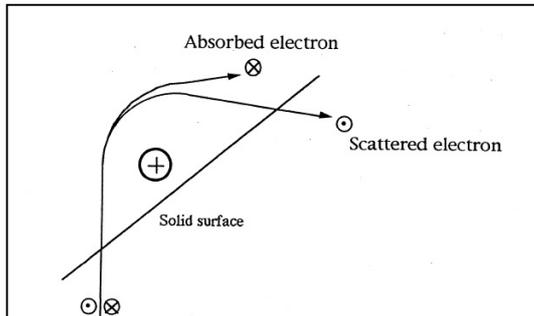
ここでは吸収電流法による偏極度測定の方法を示す。これはある程度強い電子電流が得られる場合に有効な方法で、多価イオンによる 2 次電子の偏極度を直接計測するには向かない。従って本研究の様に 2 段構えの校正過程を必要とする。つまり 2 次電子はモット検出器で測定し、そのモット検出器を偏極電子線源により校正する。吸収電流法では高原子番号の金属表面を斜め入射した電子に対するスピフィルターとして利用する。



上図はいわゆるモット散乱の模式図である。中心の原子に向けて同じ方向からスピンのことなる電子を入射した場合にその散乱方向が電子の磁気モーメントに働くスピ軌道相互作用の力  $F$  によりアップスピンとダウンスピンで異なる様子を示している。スピ軌道相互作用は原子番号  $Z$  が大きいほど大きいのでなるべく原子番号の大きい元素が好ましい。真空中での安定性も考慮してよく金が見つかる。

この効果を利用すると金属表面は 1 つのスピフィルターとして用いることができる。すなわち次図に示すように金属表面に斜めに入射した電子のうち 1 つは金属内を長距離はしることになり他方は短距離ですむ。従ってその間にほかの原子によって散乱され金属内にとどまる確率が高くなる。そのような電子は結局金属に吸収され吸収電流に寄与する。他方の電子は真空中に放出される確率

が高くなる。この効果は入射電子の速度に依存するため、吸収電流の入射エネルギー（電圧）依存性を観測することにより、入射電子線の偏極度を求めることができる。



100%偏極していた場合吸収と散乱がちょうど打ち消しあって吸収電流がゼロとなるような電子加速電圧がある。(金で 25° 入射の場合およそ 160V) スピンを逆転させるとそれが  $\Delta E$  だけ変化する。上の条件ではおよそ  $\Delta E = 1.8 \text{ eV}$ 。部分偏極の電子線に対して同様な電圧差が  $\delta E$  であったとするならば、偏極度は単純に  $P = \delta E / \Delta E$  と求められる。

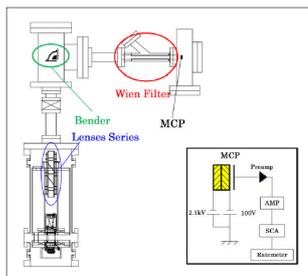
#### (4) 多価イオン源の現状

これから実験を進めるにあたり使用する多価イオン源について現況を示す。従来の 300keV 仕様の Tokyo EBIT に加えて 20keV 仕様の CoEBIT が作製されその装置からもイオンを取り出すことができるようにビームラインを整備しつつある。

下図：CoEBIT



次図に CoEBIT からの多価イオンビーム引き出しのためのビームラインの設計概念を示す。



CoEBIT 内部にビームレンズとステアラーを挿入し、取り出したビームはバンダーにより水平方向に変換され、ウィーンフィルターにより価数分離をおこなう。

Tokyo EBIT は建設以来 15 年以上たつが、未だに現役で働いている。



#### (5) 今後の計画

近々には、まずモット検出器を偏極電子線源とドッキングさせ校正を行うことである。校正が終了した後はいよいよイオン源にモット検出器を取り付け 2 次電子のスピンの測定を行う。まずは Pfandzeller らの実験の追試、さらに高価数イオンでの実験をおこない偏極度が価数とともにどう変化するかを測定したい。さらには標的が否磁性体の場合に本当に偏極度がなくなるのか、フントの規則のように多価イオンが電子を受け取るときにスピンの揃う方がより安定だとすると、2 次電子にも偏極を促す作用が働く可能性がある。周辺の磁場も影響するかもしれない。そういった研究もしてみたい。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 3 件)

① Nakamura Nobuyuki, Fred J. Currell, Hu Zhimin, Kato Daiji, Li Yueming, Ohtani Shunsuke, Sakaue A. Hiroyuki, Tong Xiao Ming, Watanabe Hirofumi, Watanabe Tsutomu, Yamada Chikashi, “Radiative and collisional processes of highly charged heavy ions studied with electron beam ion traps”, Research Report NIFS PROC Series, 81, 2010, 170–176. 査読あり

② Tetsuo Tanemura, Seiichi Sato, Manisha Kundu, Chikashi Yamada, and Yoshitada

Murata, “Growth of single crystal SiO<sub>2</sub> clusters on Si(001) surface”, J. Appl. Phys. 105, 2009, 074310-1-7, 査読あり

③R. Nakayama, M. Tona, N. Nakamura, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, C. Yamada, A. Yamazaki, S. Ohtani, M. Sakurai, “Guiding and blocking of highly charged ions through a single glass capillary”, Nuc. Instrum. Meth. Phys. B. 267, 2009, 2381-2384. 査読あり

〔学会発表〕(計2件)

①石黒雄介、山田千櫨、中村信行、GaAsを用いたスピン偏極電子線源の開発、原子衝突研究会第35回年会、2010.8.9 奈良女子大学

②山崎詔、山田千櫨、中村信行、山田千櫨、大谷俊介、“多価イオン照射による固体表面発光”、日本物理学会、2010.3.21、岡山大

〔その他〕

ホームページ等

sapphire.pc.uec.ac.jp

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山田 千櫨 (YAMADA CHIKASHI)

電気通信大学・名誉教授

研究者番号：70037266

### (2) 研究分担者

中村 信行 (NAKAMURA NOBUYUKI)

電気通信大学・レーザー新世代研究センター

准教授

研究者番号：50361837