

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24651098

研究課題名(和文)円筒形表面ウェイクポテンシャルによる分子軸配向制御ビームの生成に関する研究

研究課題名(英文)Study on production of molecular alignment beams by wake potentials generated on cylindrical surfaces

研究代表者

土田 秀次(Tsuchida, Hidetsugu)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50304150

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高速分子イオンのナノキャピラリー透過による表面ウェイク効果を実験的に研究し、キャピラリー内壁表面との相互作用によって発生する電子分極効果による分子軸配向に関する情報を得ることを目的とした。加速器から得られた高い平行度を持つ高速HeH⁺イオンをナノキャピラリーに入射し、出射する粒子のエネルギーを高分解能に分析することで、表面ウェイク効果の発生を調べた。出射する粒子のうちH⁺イオンのエネルギー分布を詳細に調べると、表面ウェイクが発生した際に見られる特徴が現れた。この結果から、高速分子イオンがナノキャピラリーを透過する際に、表面ウェイクによる分子軸配向が起こるを見出すことができた。

研究成果の概要(英文)：In this work, we study experimentally wake effects on the fast-molecular transmission through nanocapillaries. The purpose of this study is to obtain information about the molecular alignment due to the electron polarization wakes induced by glancing scattering of molecular ions with capillary walls. The experiment was carried out using a single-ended 4 MV Van de Graaff accelerator at Quantum Science Engineering Center, Kyoto University. A well-collimated beam of 1.0 MeV HeH⁺ ions with a beam divergence angle less than 0.2 mrad was directed into Al₂O₃ nanocapillaries. The outgoing energy of transmitted particles (dissociated fragments of H⁺ and He_{1,2}⁺ ions and non-fragment HeH⁺ ions) was measured as a function of the emergent angle, using a high resolution magnetic spectrometer. We observed that split energy distributions as well as asymmetric intensities for the dissociated fragments of H⁺ and He_{1,2}⁺ ions, and found that polarization wakes arise at an inner wall of capillary.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：分子軸配向 表面ウェイク効果 ナノキャピラリー 高速分子・クラスターイオン

1. 研究開始当初の背景

近年、量子ビーム科学の分野では、スピン方向や電子状態など量子状態を選別したビームの開発、およびそれを用いた応用研究が国内外で盛んに行われている。中でも、分子配向ビーム (aligned or oriented molecular beams) は、回転量子制御した分子と物質との相互作用を対象とする原子分子物理学や表面反応科学などの研究分野において、重要な要素技術となっている。これまでの既存の研究では、分子ビームの配向制御は、レーザー照射、多重極電磁場や流体場を用いることによって実現されている。

本研究の着想に至った背景には、放射線物理学分野で過去に行われた、高速イオンと薄膜・固体表面相互作用によって生じる「ウェイク現象」の研究成果がある[1]。この現象は、高速度イオンの航跡にできる電子の粗密波(分極効果により発生)に起因するもので、入射イオンが分子・クラスターの場合、このウェイク効果の影響で分子軸がイオンの進行方向に揃う現象である。このウェイク効果を、従来研究されてきた平坦な固体表面ではなく、円筒表面上に発生させることで、分子軸の配向と指向性との両方を兼ね備えたビームが発生できると期待される。このような円筒表面ウェイク効果を実現する方法として、ナノキャピラリー(数十 nm の孔径)を用いることを考えた。他方、本研究にナノキャピラリーを用いる着想に至った背景には、荷電粒子のキャピラリー透過特性に関する研究があり、キャピラリー内壁との相互作用により、エキソチック原子の分光研究や内壁表面の帯電効果により特殊なビーム偏向(ビームガイド効果や集束効果)に関する研究が報告されている[2-4]。

本研究の方法は、キャピラリーに分子イオンビームを透過させ、キャピラリー内壁表面に発生するウェイク効果によって分子軸が一方向に揃うといった物理機構によるものであり、従来の方法に比べて格段に簡便な方法であることが特長の一つとして挙げられる。本研究が成功すれば、分子配向制御の新しい手法となり、新たなビーム技術の開拓に繋がると期待される。

参考文献

- [1] Z. Vager, D.S. Gemmell, B.J. Zabransky, Phys. Rev. A **14** (1976) 638
- [2] S. Ninomiya *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 4557
- [3] Y. Yamazaki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., **65** (1996) 1199
- [4] N. Stolterfoht *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 133201

2. 研究の目的

本研究では、数十 nm から数十 μm の孔径を持つ単一および多孔キャピラリーによる分子ビーム配向制御法の基礎研究を行う。本研

究において、キャピラリーに注目した理由は、キャピラリーには円筒形の表面チャンネルとコリメータという、二つの機能が備わっているといった点である。これら特異な機能は、キャピラリーを透過する分子イオンの回転状態や分子軸の向きに何らかの影響を与えることが期待される。例えば、高速度の分子イオンが固体表面近傍で小角散乱する際に表面ウェイクと呼ばれるイオンに追従できない電子分極が生じ、このウェイクポテンシャルの作用により、分子イオンの分子軸が進行方向に対して配向することが期待される。

本研究の目的は、分子イオンがナノキャピラリー内壁近傍を通過する際に表面で生じる表面ウェイクによる分子イオンの配向を観測することである。本実験では、Bohr 速度程度に加速した高速度の分子・クラスターイオンを用いて、キャピラリーの透過特性に関する知見を得る。特に、キャピラリーから射出する粒子のエネルギー、種類、角度分布、荷電状態等を系統的に調べることで、分子・クラスターが高い透過率で生成される機構を見出す。更に、分子イオンをナノキャピラリーに透過させ、キャピラリー内壁表面との相互作用により生じる表面ウェイク効果に関する新たな知見を得る。

3. 研究の方法

本研究では、高速度の分子・クラスタービームを用いるために、実験は、京都大学工学研究科附属量子理工学教育研究センターに設置された 2.0 MV ペレトロン型タンデム加速器と 4.0 MV シングルエンド Van de Graaff 型加速器、筑波大学研究基盤総合センターの 1.0 MV タンデトロンおよび日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所の TIARA に設置された 400 kV イオン注入装置を用いて行った。タンデム加速器を用いた実験では、Cs スパッタ型イオン源から炭素クラスターイオン (C_n^+ ($n=2-4$)) を発生させた。シングルエンド加速器を用いた実験では、PIG 型イオン源から HeH^+ イオンを用いた。原子力機構の加速器施設では、 C_{60} イオンを用いた実験を行い、イオン発生には Freeman 型イオン源を用いた。

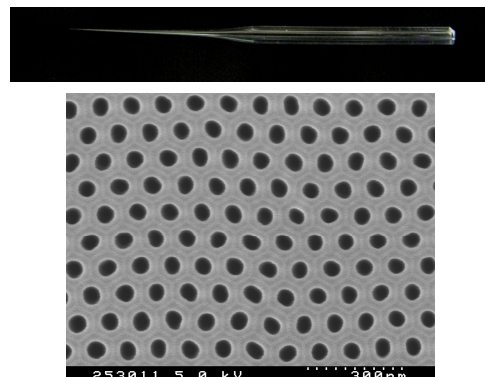


図 1: 上図 テーパー型マイクロキャピラリー(自作)、下図 アルミナ製多孔ナノキャピラリーの SEM 像(京都大学工学研究科マイクロエンジニアリング専攻木下定氏の協力)

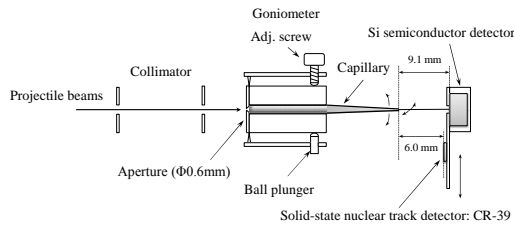


図2：高速分子・クラスターイオンのキャピラリー透過特性の測定における実験装置図

本研究で用いたキャピラリーは、図1に示すホウケイ酸ガラス製のテーパ型マイクロキャピラリー（先端出口径：14 μm ）とアルミナナノキャピラリー（SmartMembranes Ltd. 製、SEM 画像から測定した平均孔径：67 nm）の2種類である。

加速器からのイオンはコリメータを用いて高い平行度のビームにする。特に、ナノキャピラリーの透過実験を行う際には、ビーム発散角をキャピラリーの幾何学的開口角以下になるようにした（具体的には、ビーム発散角は 0.2 mrad 以下、キャピラリーの開口角は 1.3 mrad である）。

図2は、キャピラリーの透過特性に関する実験において、キャピラリーから出射する粒子のエネルギー、種類、角度分布、荷電状態等を測定する際に用いた実験装置を示す。コリメートしたビームをキャピラリーに入射し、出射する粒子を半導体検出器で測定する。また、出射した粒子の空間分布を調べるため、固体飛跡検出器（CR-39）を用いた。更に、この実験装置図には示していないが、キャピラリーと検出器の間に、平行平板型静電ディフレクターを設置し、粒子の荷電分布を測定する。

図3は、 C_{60} ビーム透過特性の実験に用いた装置図を示す。コリメートしたビームをゴニオメータ（Panmure Instruments Ltd.）に取り付けたキャピラリーに入射する。ゴニオメータは、 θ と ϕ の二軸を制御でき、これによりキャピラリー軸とビーム軸とを一致させるように調整する。キャピラリーから出射した粒子を平行平板型静電ディフレクターで偏向し、蛍光アノード付MCPとCCDカメラから成る粒子イメージング検出器を用いて測定する。これにより、粒子の荷電状態および空間分布のその場計測が可能になる。

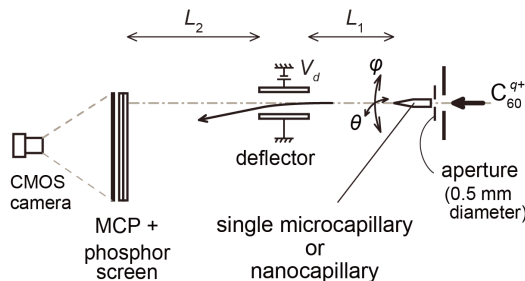


図3：キャピラリー透過粒子の空間分布測定に用いた粒子イメージング検出装置。（日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所千葉敦也博士開発）

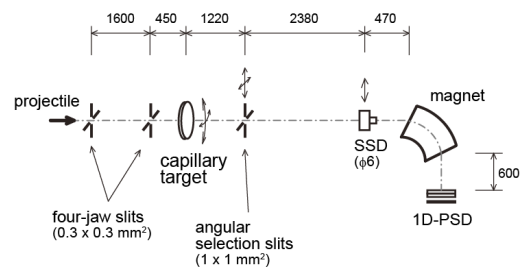


図4：高速分子イオン透過におけるキャピラリー内壁の表面ウェイク効果の測定装置図。（京都大学工学研究科マイクロエンジニアリング専攻木村健二博士、中嶋薫博士らが開発した高分解能エネルギー分析装置を借用して実験を実施した）

図4は、高速分子イオンのキャピラリー透過による表面ウェイク効果の実験に用いた装置図を示す。加速器からの 1.0 MeV HeH^+ イオンをナノキャピラリーの入射し、出射してくる解離イオン (H^+ および $\text{He}^{1,2+}$) の運動エネルギーを高分解能磁場分析によって調べる。

4. 研究成果

本研究では、以下の3つのテーマ：

- MeV 領域の少数炭素クラスターイオン (C_n^+ ($n=2-4$)) のキャピラリー透過特性
- C_{60} イオンのキャピラリー透過特性
- 高速2原子分子イオン (HeH^+) のナノキャピラリー透過における表面ウェイク効果

について行った。それぞれの研究で得られた成果を以下に述べる。

MeV 領域の少数炭素クラスターイオン (C_n^+ ($n=2-4$)) のキャピラリー透過特性

本研究では、数個の原子から成る MeV 領域の分子・クラスターイオンを用いて、10 μm 程度の出口径を持つテーパ型のガラスキャピラリーに対する透過特性について、クラスター分解せずに透過する割合のイオン速度、およびクラスターサイズ依存性を調べた。用いたクラスターは、タンデム加速器から得た C_n^+ ($n=2-4$) イオンで、速度領域は 0.89 ~ 1.79 a.u. である。キャピラリー透過後の粒子を半導体検出器によりそのエネルギーを測定し、クラスター分解せずに透過した割合を調べた。得られたエネルギースペクトルを図5に示す。このスペクトルを解析すると以下の事が分かった。まず、クラスター分解せず透過する割合は、イオン速度に依存し、速度が遅くなるほど、透過割合が増加することが分かった。更に、同じ速度を持ち異なるクラスターサイズのイオンの透過割合は、クラスターイオンの電子状態における安定性を反映することが分かった。すなわち、炭素イオンの安定性はクラスターを構成する炭素粒子の個数が奇数個で電子的に安定になるが、透過割合は安定性が高いほど多くなる、すなわち、奇数個のクラスターイオンの方が隣り合う偶数個のそれと比べて透過割合が多くなることが分かった。次に、キャピラリーを透過したクラスタ

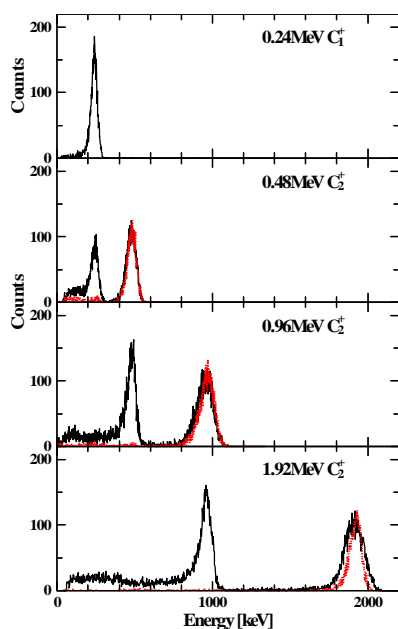


図 5：単一マイクロキャピラリーを透過した C_2^+ クラスターイオンの半導体検出器で測定したエネルギースペクトルの入射エネルギー依存性。

ーイオンビームの空間分布、すなわちビームスポットの広がりや調べる、単原子イオンビームのものに比べて、ビームスポットが集光していることが分かった。これは、クラスタービームのマイクロ化にキャピラリーを用いることが有用であることを示した結果である。

上記の実験結果を踏まえて、次に、キャピラリー透過におけるクラスター分解過程を調べるため、上記の研究で用いた同じ炭素クラスターイオン (C_2^+ イオン、速度領域：0.89 ~ 1.79 a.u.) を用いて、キャピラリーを射出する粒子の荷電分布測定を行った。その結果、まず、キャピラリー内で分子分解せずに透過したイオンの荷電状態は、入射価数と同じものが支配的であり、このことからキャピラリー表面内壁と相互作用せず直接透過したものであることが分かった。一方、分子分解を経て射出する分解片粒子 (C_1) の荷電分布は、固体標的を透過させた際に得られる平衡電荷分布とその速度依存性ととも定量的に一致することが分かった。この結果から、キャピラリー内での分子分解は、キャピラリー内壁と小角散乱することにより生成されると推定される。

C_{60} イオンのキャピラリー透過特性

本研究では、ガラス製のテーパ型単一マイクロキャピラリー（出口径：10 μm 程度）、および多孔ナノキャピラリー（材質： Al_2O_3 、孔径：70 nm 程度）を用いて、60個の炭素原子から成る C_{60} イオンにおけるキャピラリー透過特性を調べた。キャピラリーから射出する粒子の種類、荷電状態、角度分布等を同時計測するため、蛍光アノード付MCPとCCDカメラから成る粒子イメージング検出器を用いて測定

した。用いた C_{60} イオンのエネルギーは360 keVと720 keVの2種類であり、これらに相当する速度は0.14 a.u.と0.2 a.u.で、この速度領域はこれまで他の研究で報告されている低速多価イオンのキャピラリーガイド効果におけるものとはほぼ等しい。図6に、単一マイクロキャピラリーから射出した粒子のイメージング画像を示す。射出する粒子の殆どは C_{60} イオンであり、そのスポットサイズはキャピラリー出口径とほぼ同じであることが分かった。これは、 C_{60} 分子のような構成原子数が多いクラスターイオンのマイクロビーム化に対しても、キャピラリー法が有用であることを示している。 C_{60} イオンの他に射出する粒子種は、中性化した C_{60} 粒子や C_{60} から偶数個の炭素原子が取れたフラレン構造を持つ分解イオン (C_{60-2m}^+ ($m=1, 2, 3, \dots$)) などである。この分解イオン生成は、イオン速度が減るに従い減少する。尚、この実験では、 C_{60} が多重分解して生じる解離イオン (C_n^+ ($n=1, 2, 3, \dots$)) は殆ど観測されなかった。次に、ナノキャピラリーを用いた実験では、単一マイクロキャピラリーで得られた結果とほぼ同じであった。また、 C_{60} イオンの透過割合をキャピラリー偏向角（ビーム軸に対するキャピラリー軸の傾斜角）の関数として測定した結果、キャピラ

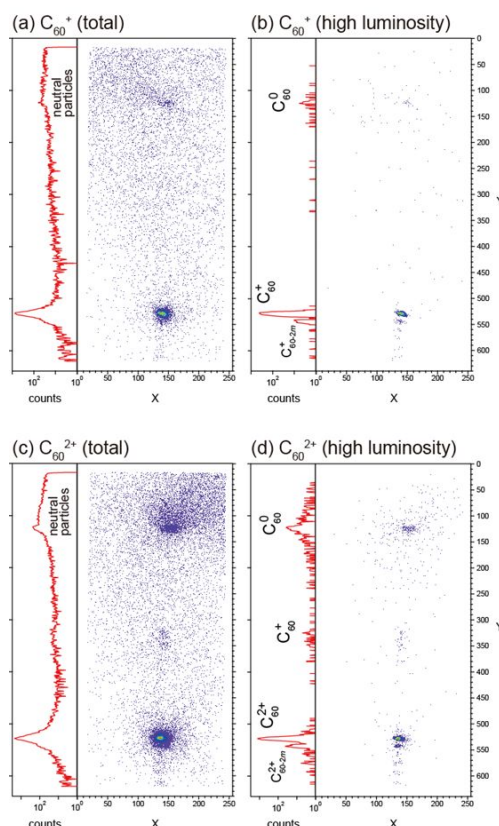


図 6： C_{60} ビームのキャピラリーから射出した粒子の二次元分布。 C_{60}^+ と C_{60}^{2+} のそれぞれの入射エネルギーは 360 keV と 720 keV である。また、(a) と (c) は発光量に伴う MCP の出力波高に制限を設けない場合、(b) と (d) は高い発光量（高出力波高）を選別した場合で、 C_{60} およびフラレン構造を持つ分解イオンのみ検出した二次元分布を表す。

リーの傾斜角をその幾何学的開口角以上にするとイオン透過割合はほぼゼロになった。このことから、本実験における C_{60} イオンの速度領域では、低速多価イオンで見られるガイド効果は生じないと結論される。

高速2原子分子イオン(HeH⁺)のナノキャピラリー透過における表面ウェイク効果

本研究では、ナノキャピラリーに高速分子イオンを透過させ、キャピラリー内壁表面との相互作用で生じる表面電子の分極効果(表面ウェイク効果)により、キャピラリーを出射する分子ビームの分子軸をビーム進行方向に揃えるといった分子軸配向制御に関する実験を行った。ウェイク効果による分子軸配向現象は、2原子分子の場合、電子の遮蔽効果によって先導イオン(leading)の後方にできる電子密度の粗密波に後続イオン(trailing)が捕捉されることに基づいている。この効果を調べるため、出射粒子の高分解能エネルギー分析を行った。用いた分子ビームは、1.0 MeV HeH⁺イオンである。このビームを2対のスリットにより0.2 mrad以下の発散角にまでコリメートし、アルミナ製のナノキャピラリー(平均孔径:67 nm、幾何学的開口角:1.3 mrad、aspect比:約750)に入射した。キャピラリーから出射してくる解離イオン(H⁺、およびHe^{1,2+})の運動エネルギーを高分解能磁場分析によって調べた。図7に実験結果の一例を示す。この図は、ゼロ度方向に出射したH⁺イオンのエネルギースペクトルを表している。2つのピークから成るスペクトル構造が得られ、それぞれ、Heイオンの前方および後方に位置した後、クーロン爆発によってエネルギーシフトしたものと同定できた。また、それぞれのピークにおける収量比およびピーク間のエネルギー分離に注目すると、非対称構造を有することが観測された。例えば、ピーク収量比では、すなわち、Heの後方に捕捉されたH⁺の収量が約75%と多くなっている。また、ピークのエネルギー分離においては、後方に捕捉されたH⁺

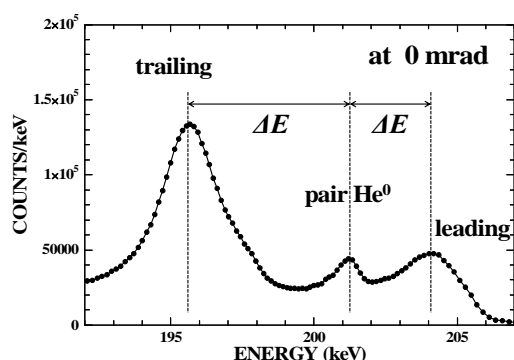


図7: 1.0 MeV HeH⁺イオンをナノキャピラリーに入射し、ゼロ度方向に出射したH⁺解離イオンの高分解能エネルギースペクトル(エネルギー分解能は1 keV)。

のエネルギーは、クーロン斥力から得られるエネルギーシフト量に比べて多くなっている。これらの結果は、ウェイク効果によりキャピラリー内で分子配向が生じたことを意味し、キャピラリー透過による高速分子イオンのウェイク効果を初めて観測した成果となった。

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4件)

S. Tomita, Y. Shiina, S. Tamura, R. Kinoshita, S. Ishii, and K. Sasa, "Measurement of backward secondary electron yield under molecular ion impact coincident with emerging projectiles", Nucl. Instrum. Meth. B, 査読有, 354 (2015) 109-111

H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata, and A. Itoh, "Transmission properties of C₆₀ ions through micro- and nano-capillaries", Nucl. Instrum. Meth. B, 査読有, 315 (2013), 336-344
J. Yokoe, H. Tsuchida, K. Nishimura, R. Murakoshi, S. Mori, M. Naitoh, T. Majima, and A. Itoh, "Charge-state distributions of fast diatomic carbon ions and dissociated fragments passing through microcapillaries", J. Phys. B.: At. Mol. Opt. Phys., 査読有, 46 (2013), 115201

H. Tsuchida, S. Tomita, K. Nishimura, R. Murakoshi, M. Naitoh, K. Sasa, S. Ishii, A. Yogo, and A. Itoh, "Properties of fast carbon cluster microbeams produced with a tapered capillary", Nucl. Instrum. Meth. B, 査読有, 293 (2012), 6-10

[学会発表](計10件)

土田秀次、杉山元彦、上谷俊郎、間嶋拓也、今井誠、斎藤学、伊藤秋男、「高速多原子分子イオンのナノキャピラリー透過特性」、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学、2015年3月21~24日
H. Tsuchida (Oral), K. Nakajima, J. Yokoe, M. Sugiyama, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, Y. Saitoh, K. Narumi, A. Chiba, K. Yamada, S. Matoba, K. Hirata, H. Shibata, K. Kimura, A. Itoh, Wake effects on fast-molecular transmission through nanocapillaries, 26th Int. Conf. on Atomic Collisions in Solids, Debrecen, Hungary, July 13-18, 2014

土田秀次 (招待講演)、「高速分子・クラ

スターイオンのキャピラリー透過特性」、
応用物理学会薄膜・表面物理分科会第 14
回「イオンビームによる表面・界面解析」
特別研究会、神奈川大学、2013 年 12 月
14～15 日

杉山元彦、横江潤也、間嶋拓也、今井誠、
土田秀次、伊藤秋男、「高速分子イオン
のナノキャピラリー透過における偏向
角度分布測定」、日本物理学会 2013 年秋
季大会、徳島大学、2013 年 9 月 25～28
日

土田秀次、中嶋薫、横江潤也、杉山元彦、
太田優史、間嶋拓也、柴田裕実、冨田成
夫、笹公和、平田浩一、鳴海一雅、齋藤
勇一、千葉敦也、山田圭介、的場史朗、
木村健二、伊藤秋男、「高速分子イオン
のナノキャピラリー透過におけるウェ
イク効果」、日本物理学会 2013 年秋季大
会、徳島大学、2013 年 9 月 25～28 日

J. Yokoe, S. Mori, R. Murakoshi, H.
Tsuchida, T. Majima, M. Imai, H.
Shibata, A. Itoh, Charge-state
distributions of fast diatomic carbon
ions passing through a single
microcapillary, 25th Int. Conf. on
Atomic Collisions in Solids, Kyoto,
Japan, Oct. 21-25, 2012

H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K.
Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba,
K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata, A.
Itoh, Production of C₆₀ microbeams by
single-microcapillary methods, 25th
Int. Conf. on Atomic Collisions in
Solids, Kyoto, Japan, Oct. 21-25, 2012
S. Tomita, H. Tsuchida, Y. Shiina, R.
Kinoshita, J. Yokoe, K. Yamazaki,
S. Ishii, K. Sasa, Transmission of fast
carbon cluster ions through an Al₂O₃
nano-capillary foil, 25th Int. Conf. on
Atomic Collisions in Solids, Kyoto,
Japan, Oct. 21-25, 2012

横江潤也、杉山元彦、間嶋拓也、土田秀
次、今井誠、柴田裕実、伊藤秋男、「高
速分子イオンビームの Al₂O₃ ナノキャ
ピラリー透過特性」、日本物理学会第 68 回
年次大会、広島大学、2013 年 3 月 26～
29 日

横江潤也、森翔、村越亮平、土田秀次、
間嶋拓也、今井誠、柴田裕実、伊藤秋男、
「キャピラリーから出射したクラスタ
ーおよび解離片の荷電分布測定」、日本
物理学会 2012 年秋季大会、横浜国立大
学、2012 年 9 月 18～21 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

土田 秀次 (TSUCHIDA, Hidetsugu)
京都大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号： 50304150

(2) 研究分担者

冨田 成夫 (TOMITA, Shigeo)
筑波大学・大学院数理物理系・准教授
研究者番号： 30375406

齋藤 勇一 (SAITOH, Yuichi)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機
構・原子力科学研究部門 高崎量子応用研
究所 放射線高度利用施設部・課長
研究者番号： 40360424