

原子衝突研究協会誌 2009年第6巻第6号

# しよとつ

**Journal of Atomic Collision Research**



**The Society for  
ATOMIC COLLISION  
RESEARCH**

原子衝突研究協会 2009年11月15日発行  
<http://www.atomiccollision.jp/>

# しょうとつ

## 第6巻 第6号

### 目次

総説:金属原子線源 (長田哲夫)	... 4
井口さんとのこと (福田昭)	... 18
原子衝突若手の会第30回秋の学校開催報告 (第30回秋の学校開催事務局)	... 20
原子衝突研究協会運営委員選挙について (2009年選挙管理委員会)	... 22
第11回原子衝突研究協会若手奨励賞募集要項 (庶務)	... 22
国際会議発表奨励事業に関するお知らせ (庶務)	... 23
「しょうとつ」原稿募集 (編集委員会)	... 23
今月のユーザー名とパスワード	... 23

## 総説

### 金属原子線源

長田 哲夫

明星大学・元教授 (首都大学東京・客員教授)

sp8v6489@woody.ocn.ne.jp

平成 21 年 9 月 21 日原稿受付

#### 1. はじめに

本誌を発行する原子衝突研究協会の原子衝突とは何でしょうか。厳密な定義は知りませんが、取り敢えず光子、電子、原子、分子、イオン(原子イオン、分子イオン)の中の二つの間(同種間も含む)の相互作用(衝突)による動的過程を原子衝突あるいは原子過程と言う、としておきます。ただし、光子と電子の中の組合せは除きます。これらの組合せの中で、光子と原子および電子と原子の相互作用が基本的なものであり、従って今まで多くの研究者によって実験と理論の両面から詳しく研究されてきました。

原子の中では水素原子が最も基本的なものであり、他の原子種が関係する動的過程を考える場合の出発点となりますが、自然界は電子を複数もっている原子であるが故の面白い現象を用意しています。例えば自動イオン化共鳴現象は電子を 2 個もつ He 原子から[1]、またオージェ過程は電子が 3 個のリチウム原子から[2]観測されます。更に I, Xe, Cs, Ba, 希土類原子と続く原子系列の光吸収では 4d 巨大共鳴(4d giant resonance)が観測されています[3, 4]。この共鳴は Ba あたりまではポテンシャル形状共鳴(shape resonance)と呼ばれていますが、希土類原子の方へ進みますと共鳴の形が自動イオン化共鳴の様相を呈してきます。形状共鳴は 4d から励起する電子に対するポテンシャルを使って 1 粒子モデルで説明されていますが、電子分光で調べますと 4d 殻より外側の副殻電子にも光イオン化の共鳴的な増加が同時に観測さ

れます[3, 5]。詳しい議論は他に[6, 7]譲るとして、これらの現象はもともと電子間に電気・磁気的な相互作用があるために起きるのであり、原子番号または電子数が 1 つ違うだけで微妙に、あるいは大きく変わります。こういった現象の多様性が研究者の好奇心を煽り、研究者に多くの研究の場を提供しています。

言うまでもなく、原子衝突あるいは原子過程の分野は宇宙物理学をはじめ、高層大気、放電、核融合、レーザー、化学反応、質量分析や原子吸光分析を始めとする物理分析など、多くの分野と深く関わっている基礎的な研究分野です。この分野の実験的研究は多くの場合真空中で標的原子(分子)に光、電子あるいはイオンを当てて、入射体の変化、或いは標的から放射される電子や光子、生成イオンなどを調べます。

筆者が原子衝突の世界に足を踏み入れたのは約 40 年前です。この間、真空技術や計測技術の進歩と共に実験の対象が扱いやすい原子・分子から取扱いの面倒な金属原子や複雑な分子、さらにクラスターへと、また実験内容が 1 種類の衝突粒子(入射粒子または生成粒子)の検出から 2 種類、あるいはそれ以上の種類の検出へと変わってきています。すぐ後で触れるように、自然界に存在する 92 種類の原子種のうちの約 85 %が常温で固体の金属です。金属原子はアルカリ土類原子を除いて開殻原子であり、理論的な扱いの方も実験と同様に面倒になります。しかし、原子過程を多くの開殻原子を含めて系統的に理解するため、ま

た上に挙げた諸分野とも関連が深いことから、今後も孤立金属原子を標的とする原子過程の実験的、理論的研究が続くと考えられます。

本稿では、今まで主として金属原子の関わる実験を行ってきた経験を基にして、金属原子線の生成法的一端を紹介してみます。原子という言葉を使うとき、そのイオンも含むことがあります。本稿で原子と言うときには中性の原子を指すものとします。なお、金属原子線源に関しては大変役に立つ Ross and Sonntag の総説[8]があります。また、金属原子を含めた広い意味の原子源に関しては、L. Válye の優れたテキスト [9] があります。

## 2. 元素の周期表を眺めると

さて、ある分野の研究が発展して行くとき、やり易いところから手がつけられる、というのが普通です。原子衝突の世界の発展を標的という観点から眺めてもそう言えます。対象を原子だけに限ると、最も扱いやすい希ガス原子から始まって、アルカリ原子、アルカリ土類原子、他の金属原子という方向へ進んで来たと言えるでしょう。孤立金属原子の原子過程を調べるには、固体金属を真空容器の中で加熱して気化させる必要があります。しかし、そのための金属原子線源の規格品はありません。端的に言えば、実験に必要な金属原子線源は、その実験に合ったかたちで、実験者自ら設計する必要があります。さらに言えば、製作した金属原子線源を十分に使いこなして良い結果を出すには、まずそれを使って実験を何度か繰り返す、その原子線源の個性(くせ?)を知ることが必要です。

元素の周期表を眺めてみましょう。表にある 92 種類の元素の分類の仕方にはいろいろあるようですが、その一つに希ガス(6 種)、非金属(15 種)、そして金属(H を含めて 71 種)という分類があります。非金属は多くの場合分子のかたちで存在するので、孤立中性原子の実験は非常に難しいものでした。それでも分子ガスから RF 放電や熱解離を使って孤立中性原子を生成する努力がはらわれてきました。これに比べると 3 番目の金属の方が、非常に蒸発温度の高い一部のものを除け

ば、まだ扱いやすいと言えそうです。

最近の実験技術の進展は目覚ましく、その一つがレーザー冷却を利用した磁気光学トラップによる研究です。レーザー冷却は孤立中性原子のエネルギーを絶対零度付近まで下げる高度な技術で、室温で運動している原子では不可能な精密な研究が進んでいます [10]。この技術の Bose-Einstein 凝縮、原子時計、干渉計、量子情報処理等への応用研究は他 [11] に譲るとして、原子過程関係の研究の例を挙げれば Ca 原子の三重項遷移の超高分解能分光、Kr 原子の準安定状態の寿命の測定、超低速 Li 原子の衝突断面積の測定などです。

金属原子を標的とする原子過程実験の代表として、金属蒸気中に粒子ビームを通過させる蒸気-ビーム法と、金属原子線と粒子ビームとを交差させて行う交差ビーム法があります。本稿は熱的な中性原子を標的とする交差ビーム法に重点を置き、電荷移行衝突あるいは負イオンの電子脱離衝突を利用する高速金属原子線は対象外とします。以後、金属原子線源を誤解の可能性がない限り、慣例に従って「金属オープン」あるいは簡単に「オープン」と記します。

## 3. 金属オープン設計の基礎

### 3-1 金属オープンを使う実験の基本配置

最初に本稿で使用する 2 つの言葉、すなわち「出射」と「原子線」について断っておきます。真空の中に気体(または蒸気)を入れた容器を置きます。この容器に孔があると、そこから気体分子(原子)が飛び出てきます。英語ではこの状況を表す言葉として、容器内分子の平均自由行程が孔の大きさに比べて大きい、小さいに関わらず effusion が使われています [9]。しかし、英和辞典によりますと、effusion は“流出”とか“浸出”となっていてどうもしくりません。原子がお互いに衝突せずに孔から「飛び出る」という感じを表すには「放射」とか「射出」と訳されている emission がよいのですが、前者は光の放射と間違えてしまいそうです。従って本稿では“入射”に対応させて「出射」を使用します。因みに国語辞典には“射出”はありますが

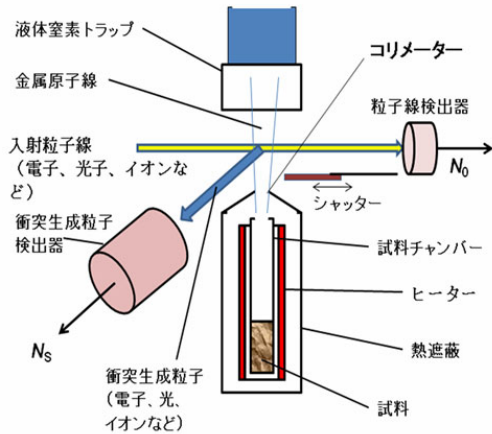


図1 金属原子線源(金属オープン)を使った実験の基本配置.  $N_0$  は入射粒子数を, また  $N_S$  は検出される生成粒子数を表す[式(4)を参照].

“出射”はありません.

一方, 原子線あるいは原子ビームと言いますと多数の原子が並行して進行する様子を想像します. しかし実際の実験では多少の発散性は避けられません. 本稿ではそのような原子の流れをも含めて「原子線」と呼ぶことにします.

本題に入り, 金属オープンを使う交差ビーム実験の基本配置を図1に示します. 試料の入った容器を外部から加熱します. 以後, この容器を「試料チャンバー」と呼びます. 加熱によって気化した金属蒸気中の原子が試料チャンバーの出射孔から出てきます. 出てくる原子の流れをコリメートし, 「原子線」として相互作用領域へ送ります. 相互作用領域の上部には水または液体窒素で冷やされたトラップが置かれていて, 真空容器の内部が標的原子の付着で汚染されるのを防ぎます. 試料チャンバーをどのように加熱するかは必要温度によって変わでしょう. 一般に  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  以下の場合には抵抗加熱(直流または交流)が安定で適しています.  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  から  $1800\text{ }^\circ\text{C}$  くらいまでは普通電子線加熱法が使われます. もっと高温が必要な場合は誘導加熱法があります. 加熱源の外側にはラディエーションシールド(radiation shield)が, 場合によっては二重, 三重に置かれ, 熱効率を良くすると同時に, 周囲の不要な過熱を防ぎます. 相互作用領域では粒子線(電子線, イオンビーム, 光子ビームなど)が交差し, 衝突生成物(電子, 光子,

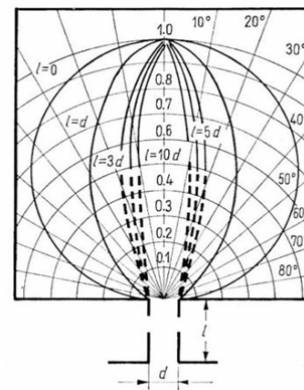


図2 噴射口の形と強度分布(文献[9]より)

イオンなど)が目的に合った方法で検出されま

### 3-2 原子線源と気体分子運動論

ここで原子が出射孔から出るときの様子を気体分子運動論で考えておきます. 金属原子線を生成する金属オープンは, 原子の出射孔の直径と長さを  $d$  と  $l$ , 試料チャンバー内の原子の平均自由行程を  $\lambda$  としたとき, 多くの場合

$$d \leq \lambda, \quad l \leq \lambda \quad (1)$$

を満たす条件で使用することになります. ちなみに, クラスタを生成するときは  $d \gg \lambda$ , および  $l \gg \lambda$  の条件下で蒸気を“噴射”して断熱膨張させます.

出射孔から出る金属原子の角分布は出射孔の形に依存します. 図2は出射孔の形で強度の角分布がどう変わるかの計算結果を示しています[9]. 図では出射口の直径  $d$ , 長さ  $l$  という2つのパラメーターの比を使っています. 出射孔の上部の中心から曲線までの長さが相対強度を表します.  $l = 0$  では気体分子運動論にあるように分布曲線が円になります.  $l/d$  が大きくなるにつれて分布が正面に集中し, 出射角の僅かな違いが強度の目立った変化を引き起こすことが判ります. このことは, 相互作用領域で標的密度を一定に保ちたいような測定, 例えば絶対断面積の測定では注意する必要があります(図14参照).

出射孔から単位時間にどれだけの原子が出てくるかということも見ておきましょう. 条件  $l \sim 0$  のとき, 角度  $\theta$  の方向に立体角  $d\Omega$  の中に毎秒出てくる

原子数  $dN$  は

$$dN = \frac{d\omega}{4\pi} \chi n_0 \bar{v} A_s \cos \theta \quad (2)$$

で与えられます[9]. ここで,  $n_0$  は容器(今の場合, 試料チャンバー)内の原子密度,  $\bar{v}$  は原子の平均速度,  $A_s$  は出射孔の断面積です.  $\chi$  は出射孔の形で決まる減衰係数で, 関係  $l \leq d$  が成り立つ多くの金属オープンでは 1 に近い値になります. 条件(1)を満たすとき, 出射孔から正面の R だけ離れた位置の単位体積当りの原子密度は

$$n = \frac{dN}{\bar{v}} = \frac{1}{4\pi R^2} n_0 A_s \quad (3)$$

と近似できます.

### 3-3 金属オープン設計における基本事項

次に金属オープンを設計するときの基本的な事柄を 6 つほど述べておきます.

(a) 必要温度: まず考えている金属を蒸発させるに必要な温度です. これにはその金属の蒸気圧と温度の関係を調べることになります. 物理学や

表 1 代表的な金属元素の蒸気圧(文献[12]より抜粋)

元素	各蒸気圧 (Pa 単位) に達する温度 (°C)				
	$10^{-2}$	$10^{-1}$	1	10	$10^2$
Ba	533	614	712	843	1015
Be	974	1074	1193	1336	1520
Ca	453	516	591	683	799
Cs	75	109	159	202	269
Cr	1149	1257	1384	1535	1719
Cu	1006	1109	1237	1389	1578
Fe	1208	1321	1455	1617	1820
Li	397	456	531	619	730
Mg	315	365	424	496	584
Mn	774	858	956	1074	1222
K	120	157	203	260	333
Rb	88	123	165	218	286
Na	188	231	282	347	428
Sr	400	458	528	614	721
Ti	1423	1554	1709	1900	2132
W	2739	2955	3205	3502	3806

化学関係の事典, ハンドブック等には金属の蒸気圧表が載せられています. 代表的な例を表 1 に示します. 蒸気圧とは同一物質の気相と液相(または固相)が共存しているとき, 気相が示す圧力をいいます. 共存している二相が平衡にあるときの蒸気圧を特に飽和蒸気圧と呼びます. 実験に必要な蒸気圧は金属オープンの構造, 入射粒子の種類, 実験手法などによって異なるでしょう. 一般的には, 衝突断面積の計算式

$$\sigma = \frac{N_s}{N_0 n L f} \quad (4)$$

から毎秒の事象数 (events)  $N_s = N_0 \sigma n L f$  の値がどれくらいになるかを概算で見積もってみます(図 1 参照). ここで  $\sigma$  は考えている過程の全断面積,  $N_0$  は毎秒の入射粒子数,  $n$  は標的原子の密度,  $L$  は有効衝突長と呼ばれる量です. また  $f$  は衝突生成物の検出効率で, 検出器の受け入れ立体角, 偏光度, 偏極度, 検出器系の検出効率などが含まれます.

ここでつけ加えたいのは, 蒸気圧を考えると融点の関係がないということです. 例えば, 実験に必要な試料チャンバー内の蒸気圧を 1 Pa ( $7.5 \times 10^{-3}$  Torr) とします. Cu がこの蒸気圧になる温度は 1237 °C, Cr(クロム)は 1384 °C です.ところがこれらの金属の融点はそれぞれ 1083 °C と 1860 °C です. すなわち, 使用温度では, Cu の場合は液体からの蒸発, Cr では固体からの蒸発, すなわち昇華ということになります. このように蒸気圧を考える上では, 融点すなわち液体か固体かは関係のないことですが, オープンを設計する上では非常に重要な要素となるでしょう. すなわち, 使用温度で液体となっている場合は, 試料をいれるつぼを横向きに設置できないからです.

(b) 原子線の原子密度とコリメーション: 原子線の断面の形と大きさをどうするか, 密度はどれくらい必要とするかは, どのような実験を行うかによります. 例えば光電子の角分布の測定を高い分解能で行いたいときは, 細くて(直径 1 mm 以下)高い密度の原子線が必要です. またレーザーポンピングを行う場合はドップラー効果の影響を避けるた

め、コリメートを十分にする必要があります。しかし、細い原子線を得るために出射孔を小さくし、コリメーターも小さくすると、コリメーターが短時間で塞がる可能性が高くなります。また高い原子密度を達成するために、相互作用領域をオープンの出射孔にできるだけ近づければ、(e)で述べるように二次的な影響が大きくなります。さらに、原子線のコリメーションを良くするために、コリメーターと相互作用領域を出射孔から遠ざけると強度が下がってしまいます。すなわち、細くコリメートされた高い原子密度の金属原子線を長時間使用するというのは大変難しい要求となるわけです。従って、どの要素が重要かを考えて、どこかで妥協することになります。

(c) るつぼの材質: 考えている試料金属と入れ物(るつぼ)との相性の問題は非常に重要です。ここで言うるつぼとは、試料チャンバーの中に入れる試料容器です。このるつぼの材質は使用温度で融解しないこと、試料物質と化学反応したり合金をつくったりしないことが必要です。例えばAlの気化にTa(タンタル)のるつぼを使用しますと、Alがるつぼの表面を濡らし、やがてるつぼに穴があいてしまいます。Alに対してはBNかWが適しています。またBeに対してはCかTa、CsにはSS(ステンレス鋼)かTaが適している、といった具合です。同じことは金属蒸気と接する試料チャンバーの材質の選択に関しても言えます。それぞれの金属試料にどのような材質のるつぼが合うかについては大変役に立つRoss and Sonntagの総説[8]がありますので、ここではこれ以上の説明は省きます。

(d) 原子出射孔の温度: 金属オープンでは試料チャンバーのうち出射孔部の温度を試料溜めの部分より常に高く保つ必要があります。この条件が満たされないと使用中に出射口が次第に小さくなってビーム強度が変わり、最後には塞がってしまいます。

(e) 金属オープンの副次的な影響: 金属オープンを使用する場合、これに起因する磁界、放射場、熱電子、イオン等の相互作用領域や検出器系への影響に注意が必要です。抵抗加熱でも電子衝撃加熱でも、大なり小なり磁界が生じます。抵抗

加熱に使用するシースヒーターの中には、シースの中にヒーター線が2本通っていて、直流電流を往復させてその電流に基づく磁界を相殺するものがあります。電子分光の場合は、これを使用した上で磁気遮蔽を施す必要があるかも知れません。試料チャンバーの原子出射孔からはいわゆる黒体放射と呼ばれる電磁波(赤外線から紫外線まで)が出てきますので、光を検出する実験ではこの電磁波が検出にかからぬように対策を講じる必要が生じます。また、オープンの温度が高くなると、試料チャンバーの内壁からの熱電子や内壁での表面イオン化で生ずるイオンが出射孔から出てきます。これらの荷電粒子は出射孔付近に置かれた偏向電場または追返し電場で排除できます。言うまでもなく、電子とイオンの両方が出てくる場合に追返し電場を使うのは禁物です。

(f) 励起種及びクラスターの有無: 取り出された金属原子線中に励起種はないか、またクラスターが含まれていないかという問題があります。まず励起種ですが、これはNISTデータをはじめいろいろな原子エネルギー準位のデータを参考にしてきちんと評価する必要があります。評価には Boltzmann分布関数  $f(\Delta E) = (2J+1) \cdot \exp[-\Delta E / kT]$  を使います。ここで、 $\Delta E = E_e - E_0$  で、 $E_0$  と  $E_e$  はそれぞれ基底状態と励起状態のエネルギーです。また、 $(2J+1)$  は角運動量  $J$  の統計重率です。例えば、Mnの最初の励起状態  $3d^6(^5D)4s^6D_{9/2}$  は基底状態  $3d^54s^2\ ^6S_{5/2}$  の上 2.11 eVのところにあります。これを蒸発温度 1243 K (970 °C) と共に分布関数へ入れて計算しますと、基底状態 1 に対する励起状態の生成量 (population) は  $1.7 \times 10^{-9}$  となり、全く無視できることがわかります。しかしFeの場合、基底状態  $3d^64s^2\ ^5D_{4,3,2,1,0}$  の微細構成成分が基底準位  $J = 4$  の上 0.12 eVの範囲に分布しており、蒸発温度 1743 K (1470 °C) での  $J = 4, 3, 2, 1, 0$  準位の相対生成比がそれぞれ 1: 0.56: 0.31: 0.17: 0.04 となります。この生成比は、例えば実験的な光吸収スペクトルと比較するスペクトルを計算する場合には大変重要になります。

次にクラスターの生成ですが、皆無とは言えないものの、無視できるほど少量である、というのが

結論です。これをきちんと検証するのは大変難しい問題です。なぜなら、クラスターの存在を調べようとして電子あるいは光を当ててイオン化するとある確率で解離するので、本当の姿が見えないからです。しかし、今まで金属原子線を使う衝突実験で、クラスターが混ざっていて困った、という話は筆者の知る限りありません。このことはむしろ金属クラスターを生成するにはどうするかを考えれば納得できます。希ガス原子のクラスターを生成するときと同様に、金属クラスターを生成するには金属蒸気を非常に小さい孔から真空中へ断熱膨張させます。逆説的に言えば、クラスターの生成を避けるには蒸気出射孔を大きくすればよいということになります。これは出射口が塞がるのを避けるという効果もあります。筆者が設計したいくつかのオープンでは、出射孔の直径を 2.5 ~ 10 mm にしています。

#### 4. 金属オープンの例

ここでは標準的な金属オープンの例として抵抗加熱型、電子衝撃型、および誘導加熱型オープンをまず紹介し、そのあとよく工夫された例を 2 つほど紹介します。蒸着で使用する電子線加熱(磁界で電子線を曲げて金属に当てる方法)は目的に適しないので省きます。

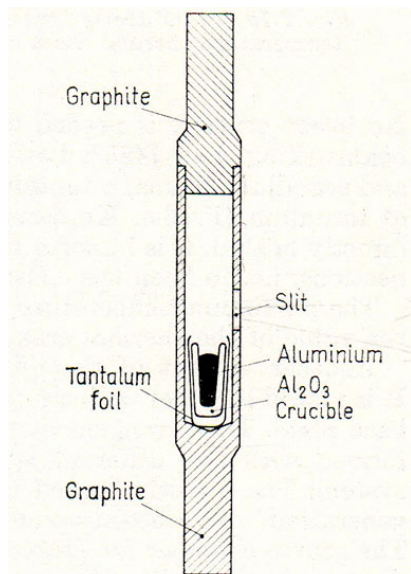


図 3 直接抵抗加熱型金属オープン。本体は水冷式の Cooling Jacket の中に置かれているが、図では省略。

#### 4-1 直接抵抗加熱型オープン

最も簡単な直接抵抗加熱型の金属オープンを図 3 に示します。円筒型の試料チャンバー自身に電流を流して加熱するタイプです。ここに示したオープンは  $^{27}\text{Al}$  の  $^2\text{P}_{3/2}$  状態の超微細構造の測定に使用されたものです[13]。ヒーター兼試料チャンバーとしてグラファイトを使用し、加熱には交流を使用しています。温度を 1670 K まで上げるのに 800 W を要しています。酸化アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) のるつぼを使用していますが、グラファイトとの付着を避けるため、るつぼの外側にタンタル箔を巻いたと記されています。

#### 4-2 抵抗加熱型オープン

蒸発温度が 1000 °C 以下では安定に使用できるシースヒーターによる抵抗加熱型のオープンが適しているでしょう。アルカリ元素、アルカリ土類元素のほか、Bi, Eu, Mn, Pb, Sm, Zn 等がそれに該当します。今までに非常に多くの異なるタイプの抵抗加熱型金属オープンが製作されていますが、その中の 3 つの例を紹介します。

図 4 に示すのは、電子スピンの存在を確かめた有名な Stern-Gerlach 実験で使用された Ag 原子線源と同じものです[14]。試料チャンバーは鉄できていて、出射孔は直径 1 mm、長さ 1 mm です。ヒーターは直径 0.3 mm のヘリカル状の白金線で、MgO 粉末内に埋め込まれています。これによってチャンバーを 1300 °C まで加熱することができたと記されています。

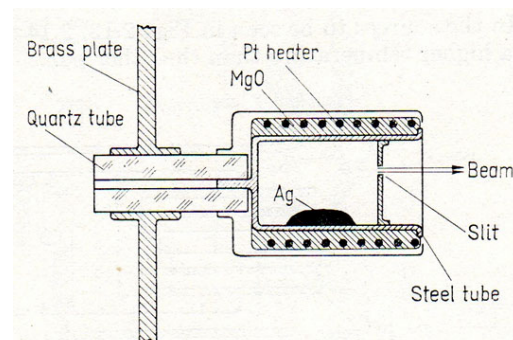


図 4 抵抗加熱型水銀原子線源。有名な Stern - Gerlach 実験で使用されたのと同じ。



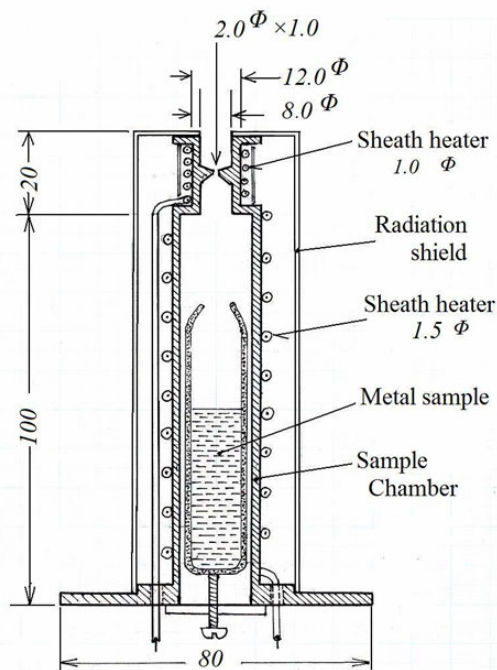


図5 二段加熱型アルカリ原子線用オープン

図5に示すのは筆者がLi以外のアルカリ原子線用として作製したオープンです[15]. 本体はステンレス鋼できています. 加熱にはシースヒーターを2本使用し, 出射孔の部分の温度を試料チャンバーの温度より常に高く保つように別々に加熱します. しかしCsとRbの場合は, 蒸発温度がそれぞれ約120, 140と低く, 出射孔部のヒーターだけで目的をはたすことができました. このオープンは下部の円盤に取り付けられた3本の支柱(図では省略)で真空容器に固定されていますが, 出射孔部のヒーターの熱が熱伝導で下部へ伝わり, 試料チャンバーが容易に必要な温度に達すると同時に, ちょうどよい温度勾配ができたからです. るつぼとしては石英かステンレス鋼のものを用意します.

アルカリ金属の気化は容易ですが, 言うまでもなく取り扱いには十分注意が必要です. CsとRbは通常ガラスのアンブルに封じ込んだ形で売られていますので, アンブルの首を切ってそのままオープン内へ底から挿入し, これを真空内へ納めて直ちに排気します. 特にCsは融点が27℃なので, 手で触っていると簡単に融解するし, 大気にさらすとすぐ空気中の水分と反応して表面に水酸化膜ができて変色します. この状態で加熱します

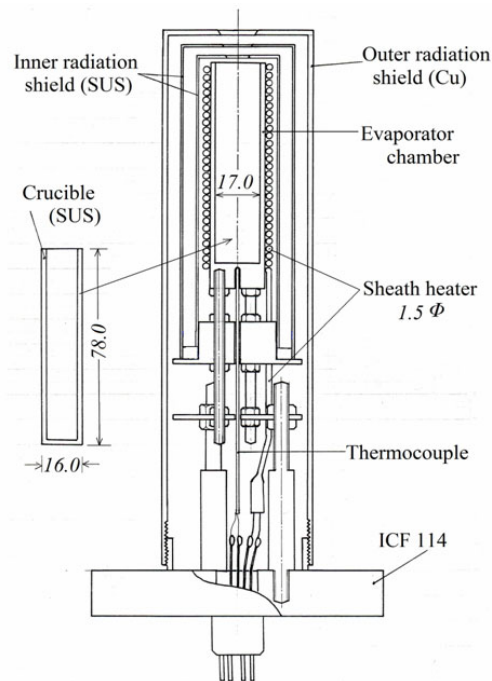


図6 Li原子線用大容量オープン

と膜が邪魔して必要温度に達しても蒸発しないということが起きます. その場合, 更に温度を徐々に上げて行けば金属内部に生じる高い蒸気圧で膜が破けて急に蒸発が始まります. (表面電離検出器, 質量スペクトル等で)蒸発を確認したら直ちに加熱電力を下げ予定の温度へもって行きます. 膜ができているときに気をつけるべきは, 急に温度を上げないことです. 急な温度上昇は突沸を引き起こし, 試料が周囲に散らばっていると支障をきたします. CsとRbにおける融解と変色は, 真空中へ封入する前にアンブルを冷蔵庫で冷やすとかなりの程度避けられます. この点に特別な工夫をした例として, アンブルを真空内に納め, 適度に排気してから機械的にアンブルを割る方法があります(Hamburgの研究グループ).

図6は蒸発温度800~1000℃のLi原子線およびアルカリ土類原子線用として設計, 製作したオープンです. アルカリ原子用のオープン(図5)と同じシースヒーターによる抵抗加熱ですが, 4~5日という長時間の使用に耐えるように容量を大きくし, 原子の出射孔を使用中に塞がることのないように大きく(10mm)してあります. 試料金属片をるつぼに入れ, これを上からオープン内へ入れます. このオープンは主としてLi原子の光イオン化

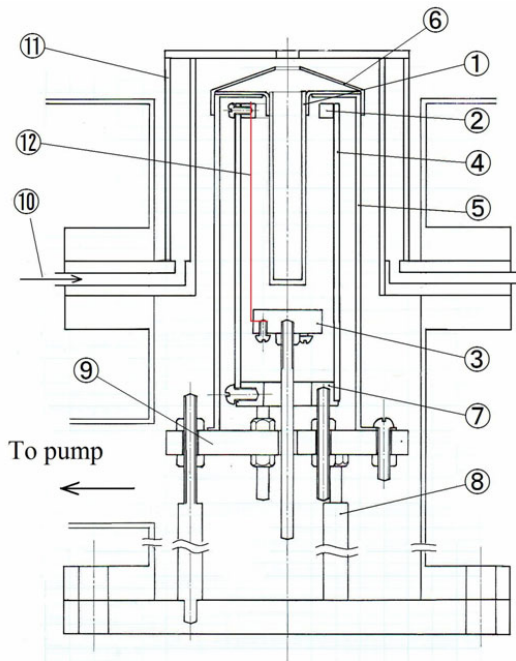


図7 高温用電子衝撃型オープン． 試料チャンバー（陽極）， W線固定リング， W線（陰極）固定ディスク， W線（陰極）支持円筒兼ラディエーションシールド， 陽極支持円筒兼ラディエーションシールド， キャップ， 陰極固定台， 支柱（3本）， 絶縁円盤（マコール）， 冷却水， 水冷キャップ， W線（3本を等配分）．

実験で使用され，多くの論文を生み出しました[2, 16, 17]．

#### 4-3 電子衝撃型オープン

蒸発温度が 1000 °C を超える金属に対しては電子衝撃型が使いやすいようです．その例を図7に示します．羽根付の円筒型試料チャンバー（陽極）の外側に3本の0.30 mm のタングステン線（陰極）を置き，陰極から放射される電子を1~3 kV の電位差で加速して陽極に衝突させて加熱するものです．通常陽極を接地し，陰極に負の高電圧をかけます．タングステン線は電極を兼ねる円筒形のラディエーションシールドの上部に固定したリングから吊り下げ，下部は円形電極に固定してあります．この電極とその下に付けてある金属棒はどこにも固定せず，タングステン線を引っ張る重りの役目をもっています．同じく熱遮蔽の役目を持つ円筒の上部には，陽極

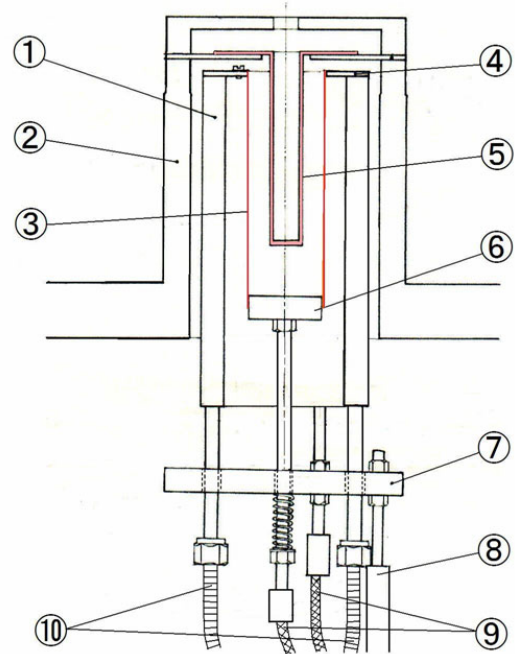


図8 改良された高温用電子衝撃型オープン．陰極（W線）支持円筒兼ラディエーションシールドを水冷にした．水冷キャップ， W線（陰極、3本を等配分）， W線固定リング， 試料チャンバー（陽極）， W線固定ディスク， 絶縁円盤（マコール）， 支柱， リード線（銅網）， フレキシブルチューブ（水冷用）．

と軽いコリメートの役目をもつキャップを乗せます．絶縁円盤を3本の柱で固定し，この円盤に円形電極を乗せる電極を固定してあります．試料を入れたるつばは，キャップを外して上から挿入します．因みに，Ce の光イオン化実験を行ったときにオープンへ供給した電力は，フィラメント電源 7.1 V / 23.0 A，電子加速電源 2.0 kV / 230 mA でした．

このタイプのオープンは希土類原子の光イオン化[18]と電子衝突イオン化の実験[19, 20]，および3d 金属原子の光イオン化の実験[21]に使用してきました．高温用として大変優れていますが，欠点の1つは長時間の使用で電極表面が汚れてくると，熱電子放射によって放電が起きて不安定になることです．これを避けるために設計した電子衝撃型オープンを図8に示します．ラディエーションシールドを水冷式にした点が図7のもの（がこれに対応）と異なります．これによってオープン

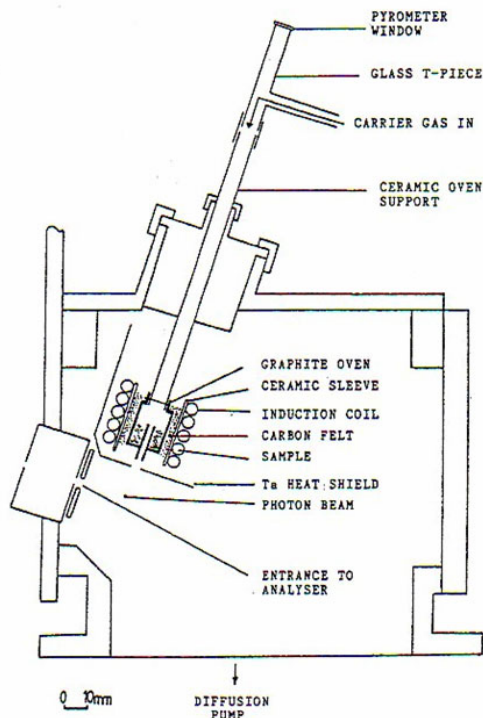


図9 高周波加熱型金属オープン（文献[24]より）

が長時間非常に安定に使用できるようになり、主として Be の光イオン化実験 [22, 23] で使用しました。

#### 4-4 誘導加熱型金属オープン

金属原子線を生成する第三の方法として RF 誘導加熱法があります。その1つの例として、Bulgin 達が光電子分光を行ったときのものを図9に示します[24]。グラファイト(黒鉛)の試料チャンバーを、炭素フェルトを挟んでセラミックで覆い、その外側に高周波(500 kHz~1 MHz)誘導コイルが巻かれています。この誘導コイルは、普通そうであるように、水冷パイプも兼ねています。このオープンを使って最大 2300 まで達成できたと記されていますが、材料を選べば 2500 までの温度を達成できるとも記されています。欠点は加熱用電源が高価なこと、安定な使用に至るまでにはかなりの経験が必要なことです。後者は試料金属、それを入れる試料チャンバーの材質、それらを囲む断熱材などのリアクタンス(またはサセプタンス)とその温度依存性が異なるので、同じように加熱してもその組合せによって加熱速度と温度分布が複雑

に変わってしまうことと関係します。出射口のブロックを防ぐための適切な構造と加熱方法の習得は、トライ・アンド・エラーによるところが多いようです。筆者はこの型のオープンの経験がありませんので、詳細は文献[8], [9]に譲ります。

#### 4-5 その他のよく工夫されたオープン 2 例

金属オープンに関する解説書を読みますと、今まで実に多くの異なるオープンが作られています。その中から、なるほどと思わせる工夫されたオープンを紹介します。

##### 4-5-1 ヒートパイプ

本稿は金属原子線の生成を中心に述べていますが、ここで金属原子の光吸収スペクトルの測定で重要な役割をはたした歴史的なヒートパイプについて触れておきます。ヒートパイプの詳細構造は例えば文献[3, 25, 26]に見ることができますが、その基本構造のみを図10に示します。金属資料を入れた配管、いわゆるヒートパイプを真空外部から加熱します。加熱にはシースヒーターや電気炉などの抵抗加熱が使用されます。ヒートパイプの両側にはガス導入系と排気系が取り付けられた部屋があり、それらの上流側と下流側にフィルターが取り付けられています。これらの部屋にはヒートパイプの光の入射口と出射口から金属蒸気が噴き出しますが、この蒸気がフィルターに達して付着するのを防ぐに十分な圧力の気体(緩衝ガスと呼ばれる)が導入されます。図10では緩衝ガスがヒートパイプの方へ流れる構造になっていて、金属蒸気の拡散防止効果を高めています。緩衝ガスとしては、測定のエネルギー(または波長)領域で

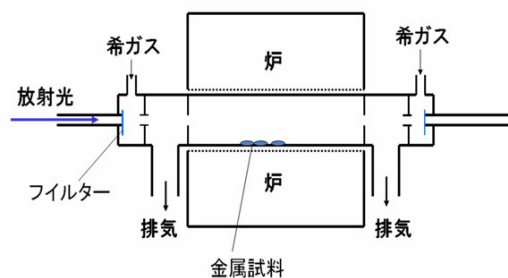


図10 金属原子の光吸収スペクトルの測定で使用されるヒートパイプ型オープンの例。

の吸収が起きないか無視できるもの、試料金属やヒートパイプ系を構成している物質との反応性のないものを選びます。一般的には希ガスが使われています。フィルターはヒートパイプ系の上流側と下流側の高真空を保つ役割も担っています。使用するフィルターとしては、測定しようとしている波長範囲の吸収が小さいか無視できて、吸収構造を持たないものを選びます。光吸収断面積はせいぜい Mb (Mega barn,  $1 \text{ Mb} = 10^{-18} \text{ cm}^2$ ) のオーダーなので、長さ 50 cm のヒートパイプで十分な吸収構造を見るためには蒸気圧を  $10^0 \sim 10^1 \text{ Pa}$  にする必要があります。これはビーム交差法で必要な蒸気圧より 1 桁か 2 桁ほど高い値です。細かい構造を見るためには蒸気圧を更に 1~2 桁高める必要があります。

#### 4-5-2 循環型オープン

金属オープンの試料チャンバーの出射孔から出る原子はトラップに付着させるとは言うものの、多くはコレクター周辺に付着してしまいます。これらは再び使用されることはほとんどないので無駄になります。このことを考慮して、融点が高いアルカリ原子用オープンを図 11 のように、循環型にした例があります[27]。測定中は cooling jacket に巻かれたパイプに液体窒素を入れて冷却し、測定終了後に jacket を加熱して付着したアルカリ金属を

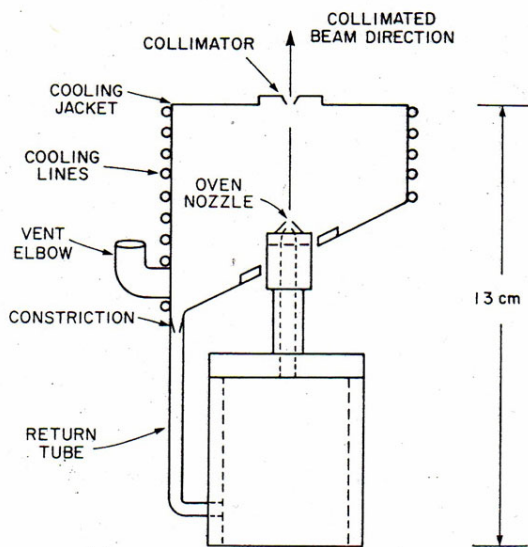


図 11 循環型アルカリ原子線用オープン[27]

溶かして試料チャンバーへ戻すというものです。

#### 5. 標的密度の決定

中性金属原子を標的とする実験のうち、いろいろな断面積をきちんと測定する実験は非常に大切ですが、精密測定のためのチェックがいろいろあって面倒な割には、地味で話題性に欠くためかあまり進んでいません。例えば 1999 年に報告された NIFS-DATA-51 “Electron Impact Ionization Data for Atoms and Ions – up-dated in 1998 –” を見ますと、70 種類の金属元素(H は除く)のうち、中性原子の断面積データがあるのは約半数の 37 種類です。これら 37 種類のうち測定データが複数あるのは 28 種類です。

衝突断面積を決めるには衝突領域の標的原子密度をきちんと決める必要があります。原子密度を決めるための実験配置の例を図 12 に示します。原子線強度をモニターするための水晶振動子型膜厚コントローラのセンサーを衝突領域の中心に挿入できるように設置します。また、原子の平均速度を測定するため、パルス電子銃、ドリフト管、イオン検出器をオープンの上部に設置しています。原子密度  $n$  は

$$n = \frac{T\rho}{\bar{v}mr} \quad (5)$$

で計算されます。ここで、 $T$  は衝突領域での原子の堆積速度、 $\rho$  は試料の個体での密度、 $\bar{v}$  は原子の平均速度、 $m$  は原子質量、 $r$  は膜厚センサー

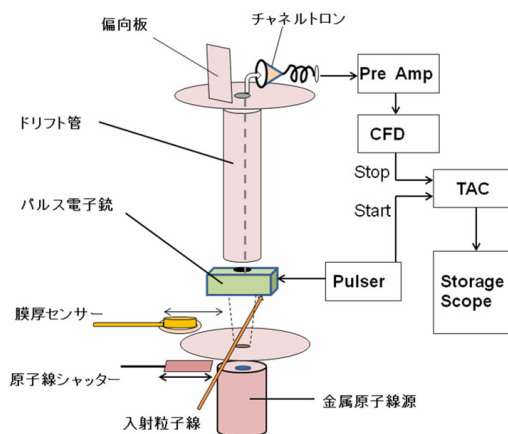


図 12 標的原子密度決定方法の概念図。

表面への原子の付着確率です。式から  $T$ ,  $\bar{v}$  および  $r$  を正確に決めることができれば密度  $n$  が正確に決まることになります。

付着確率  $r$  を決めるには特別な工夫が必要になります。例えば、膜厚センサーの周囲を、原子線の入口を除いて薄い金属板で囲み、一定時間原子線を当てた後、金属板に付着した量を精密に測定する方法があります[28]。これによれば、 $r$  は大体 1 で近似できることが確かめられています。堆積速度  $T$  は水晶振動子型膜厚コントローラに表示されます。

原子線中の原子の平均速度は試料チャンバー内の温度を正確に知ればわかると考えがちです。しかし、正確な温度測定は 1000 を越えると難しくなります。また、実際の平均速度は出射孔の形によっては温度から計算した値とかなり異なる場合がある、というのが経験者の意見です。そこで平均原子速度  $\bar{v}$  を測定することになりますが、最も厄介な部分です。その方法として、蛍光のドップラーシフトを使う方法、高感度電子天秤を使う方法、飛行時間法等が挙げられます。筆者が参加していた放射光実験施設 PF (Photon Factory, 茨城県つくば市) での共同利用実験グループでは、Ba に対してこれら 3 つの方法を試してみました。ドップラーシフト法では、色素レーザーからのレーザービームを原子線に対して直角方向から照射し、ミラーを使って斜め方向からも同じ位置に照射します。原子による共鳴吸収によって放射される蛍光を、原子線とレーザー線に対して直角な方向から検出します。測定は  $^{138}\text{Ba}$  原子の  $6s\ ^1S_0-6p\ ^1P_1$  共鳴線 553.55 nm 付近を波長走査しながら蛍光強度を記録します。このとき、斜め照射による蛍光ピークが、ドップラー効果によって直角照射による蛍光ピークに対してずれて出てきます。このずれと照射角から原子の平均速度が計算できます。この方法は上にあげた 3 つの方法の中では最も精度がよいのですが、残念なことにその適用が色素レーザーの波長可変範囲に強い共鳴線を持つ原子に限られ、どの原子にも適用できるわけではありません。

高感度電子天秤による方法は、天秤の皿に相

当する金属板に原子線が当たったとき、原子の運動量の総和に相当する力が重力とは逆向きにかかるので、原子線を当てた時と当てないときで質量表示に差が出てきます。この差と膜厚センサーで測定した試料金属の堆積速度とから平均速度  $\bar{v}$  が計算できます[29]。この方法で精度よく測定するためにはビーム強度を 100 /s かそれ以上にする必要があります。またこの方法では、天秤の皿と膜厚センサーを同時に衝突領域に置けないので、かなり複雑な機構が必要になります。

どの金属原子にも使えるという点では図 12 にも示した飛行時間法が優れています。衝突領域を通過した原子線にパルス化した電子線をあて、生成したイオンがイオン検出器(図ではチャンネルトロンが使用されている)に入るまでの平均時間と飛行距離から平均速度が計算できます。飛行時間(TOF)スペクトルの例を図 13 に示します。平均速度  $\bar{v}$  は

$$\bar{v} = \frac{\sum v_i N_i}{\sum N_i} \quad (6)$$

を使ってできるだけ正確に計算します。ここで、 $N_i$  は速度  $v_i$  のイオン数です。

標的原子の平均速度の測定に関して、経験的に判ったことを付け加えておきます。それは、金属オープンの動作条件を同じに設定したとしても、平均速度が日によって微妙に変わり、特に試料の補給のためオープンを一旦外したときに大きく変わることがある、ということです。その困った例を敢

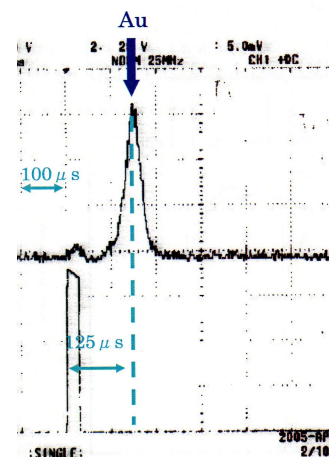


図 13 金 (Au) 原子線の TOF スペクトルの例。これから平均速度を計算する。

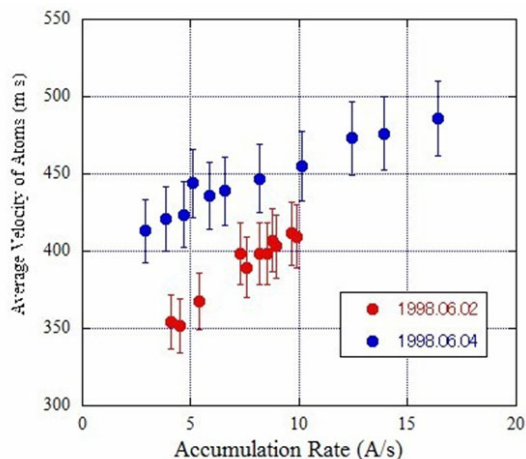


図 14 原子平均速度の原子線強度(すなわち, 蒸発温度)依存性. Ba に対して異なる日に測定した例を示している.

えて図 14 に示しました. Ba 原子の 4d 領域の光イオン化絶対断面積を測定したときの平均原子速度の測定データで, 6 月 2 日に測定した後, オープンを取り外して試料を補給し, 6 月 4 日に測定しています. 膜厚計に表示される蓄積速度の値が同じであるにも関わらず, 測定された原子平均速度  $\bar{v}$  が大きく異なっています. その原因を確認できていませんが, 試料補給後の再セットのとき, 原子ビームラインのアラインメントが微妙に変わったことが主な原因と考えられます. この点を改善するため, ジャバラ付の配管を使って, オープンの向きを修正できるように設計することを是非勧めたいと思います.

## 6. 試料の取扱いとオープンの加熱方法

金属試料の取扱いとオープンの加熱方法について簡単に触れておきます. 金属試料のうち化学的に不安定なものはアンプルに封入されるか (Rb, Cs, Eu 等), 油漬け (Li, Na, K, Nd 等) のかたちで入手されます. アンプル封入試料の取扱いは 4-2 で述べた通りです. 油漬けの試料は表面の油を紙で吸い取り, カッターナイフで表面の変質した部分を削って使用します. Li 金属はそれ自身カッターナイフで切れるくらい柔らかいのですが, その金属片は普通硬い部分で覆われています. これは空気中の水分と反応したときの熱で窒素と反応し, 窒化リチウム ( $2\text{Li}_3\text{N}$ ) ができるためです. このよ

うな試料はペンチのような工具で割って新しい面をむき出させます. Li, Na, K 等のアルカリ金属は割ったり表面を削り取ったりしたあとの新たな面がやはり空気中の分子と反応して直ちに变色し, Cs や Rb 同じ様なことが軽度ですが起きます. しかし, 手早に真空容器に入れて排気すれば問題はありません (表面の化合物は幸い蒸発温度が純粋な金属より高く, 実験後の試料はしばしば最初の形が残っていますが, 中はなくなっていて“もぬけのから”です). 反応性の弱い金属試料は瓶あるいはビニール袋に封入された金属片の形で入手されます. これらはそのまま使用します.

実験後の処理ですが, 金属によって異なりますので, ハンドブック等でその性質をよく調べる必要があります. 特に Be のように毒性のあるもの, アルカリ金属のように水に対して爆発性のものには十分な注意が必要です. また金属の粉末は多くの場合発火性ですので, 薄く試料金属が付着した器壁のアルコールによる処理は避けるべきです. 空気に十分さらして, 空気中の酸素や水分と反応して酸化物或いは水酸化物になってから, 真空機器に適するキムワイブのような紙で粉末を吸い込まぬように注意しながらふき取ります. このキムワイブも研究施設の指針に従って適切に処理する必要があります.

特別な目的で特別に設計・製作した実験装置は, まずその装置の個性を知ることから始まります. 金属オープンを使う実験も同じで, まずその個性を知ることから始まります. オープンを加熱し始めてから必要な温度で安定に働くようになるまで, 普通は 2~3 時間をかけます. 加熱でオープンの温度が上昇し始めると, 試料やオープン自体の脱ガスのため真空度が目立って悪くなります. そして試料金属の気化が始まると真空度が急によくなる, というのが一般的です. 必要な強度の原子線を得るにはオープンに供給する電力をいくらに設定すればよいか, 必要温度までどれくらいの時間をかけ, どのように電力を増して行くのがよいかは, とにかく使ってみないとわかりません.

## 7. おわりに

原子物理学の研究者が他分野の人から「原子物理学でまだやることあるのですか」という内容の事を言われた、という話を一度ならず耳にしたことがあります。原子物理学は量子力学ですべて解決できるという認識がその人にあったのでしょうか。原子的世界の現象は電子間相互作用のために非常に複雑で微妙ですが、しかしそれが故に我々の興味を引き付けています。原子衝突の研究で「飯が食える」のはまさに「電子間相互作用」のお陰、と言えそうです。

基礎科学の研究者には2つの立場があると思います。有用性に結びつく基礎研究という応用的な立場と自然界の理解という純粋科学的な立場です。応用的な立場に立つと「基礎工事なしに新しい家は建ちません」と強調します。純粋科学的な立場に立つと「自然を理解したいと考えるのは人間の本性で、音楽、絵画、文学など同様に人生を豊かにする文化の発展に寄与している」と文化面を強調します。しかし、このように立場を分けて考える必要はないのかも知れません。オワンクラゲの蛍光物質の研究でノーベル化学賞を受賞した下村脩博士のように、有用性なんかには目もくれず、もくもくと進めてきた基礎研究が、思わぬかたちで人類の役に立った、という例はいくらでもあるのですから。

## 謝辞

筆者が関わった研究での金属オープンの製作では(株)京和真空製作所の高松源治氏および高松肇氏に多大なるご協力を戴きました。この紙上を借りて深く感謝致します。

## 参考文献

[1] R. P. Madden and K. Codling, *Phys. Rev. Lett.* **12** (1964) 106.  
[2] M-T. Huang, R. Wehlitz, Y. Azuma, L. Pibida, I. A. Sellin, J. W. Cooper, M. Koide, H. Ishijima, and T. Nagata, *Phys. Rev. A*, **59** (1999) 3397.  
[3] B. Sonntag and P. Zimmermann, *Rep. Prog. Phys.* **55** (1992) 911.

[4] J. P. Connerade, J. M. Esteve, and R. C. Karnatak, *Giant Resonances in Atoms, Molecules, and Solids* (NATO ASI Series, Plenum Press 1986).  
[5] J. B. West, P.R. Woodruff, K. Codling and R. G. Houlgate, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **9** (1976) 407.  
[6] J-P. Connerade, *Highly Excited Atoms* (Cambridge University Press, 1998).  
[7] V. Schmidt, *Rep. Prog. Phys.* **55** (1992) 1483.  
[8] K. J. Ross and B. Sonntag, *Rev. Sci. Instrum.* **66** (1995) 4409.  
[9] L. Vályi *Atomic and Ion Sources*, Ch. 2 (John Wiley & Sons, London, 1977).  
[10] 清水富士夫「原子のレーザー冷却とその周辺技術」*応用物理* **66** (1991) 864.  
[11] パリティ編集委員会編「レーザー冷却がひろく原子波の世界」(丸善, 2003年).  
[12] E. Gray *et al* “*American Institute of Physics Handbook*” Third edition (McGraw-Hill Book Company, 1972) p.4-298.  
[13] H. Lew, *Phys. Rev.* **76** (1949) 1086.  
[14] W. Gerlach and O. Stern, *Ann. d. Phys.* **74** (1924) 673.  
[15] M. Koide *et al.* *J. Phys. Soc. Jpn.*, **71** (2002) 1676, **71** (2002) 2681, **72** (2003) 294.  
[16] Y. Azuma *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 3768, **79** (1997) 2419.  
[17] R. Wehlitz, M-T. Huang, B. D. DePaola, J. C. Levin, I. A. Sellin, T. Nagata, J. W. Cooper and Y. Azuma, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 1813.  
[18] G. Kutluk, H. Ishijima, M. Kanno, T. Nagata and A. T. Domondon, *J. Ele. Spec. Rel. Phenomen.* **169** (2009) 67.  
[19] S. Yagi and T. Nagata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (2000) 1374, **70** (2001) 2559.  
[20] S. Tsuge, A. Shimano, Y. Tohyama, E. Kayama, S. Obara and T. nagata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74** (2005) 3193.  
[21] U. Arp *et al.* *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27** (1994) 3389, **28** (1995) 225.  
[22] S. Hasegawa, F. Yoshida, L. Matsuoka, F.

- Koike, S. Fritzsche, S. Obara, Y. Azuma and T. Nagata, *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 023001.
- [23] F. Yoshida *et al.* *Phys. Rev. A* **73** (2006) 042709, **73** (2006) 062709, **75** (2007) 012714.
- [24] D. Bulgin, J. Dyke, J. Coodfellow, N. Jonathan, E. Lee and A. J. Morris, *Electron Spectrosc.* **12** (1997) 67.
- [25] C. R. Vidal and J. Cooper, *J. Appl. Phys.* **40** (1969) 3370.
- [26] J. P. Connerade, *Nucl. Instr. Meth.* **152** (1978) 271.
- [27] G. M. Carter and D. E. Pritchard, *Rev. Sci. Instrum.* **49** (1978) 120.
- [28] 柴田猛順, 小倉浩一, 私信.
- [29] 小倉浩一, 柴田猛順, *真空* **36** (1993) 69.