

# しょうとつ



**THE ATOMIC COLLISION  
SOCIETY OF JAPAN**

## 原子衝突学会賛助会員(五十音順)

アイオーピー・パブリッシング・リミテッド (IOP英国物理学会出版局) <http://journals.iop.org/>

Institute *of* **Physics**

アステック株式会社

<http://www.astechcorp.co.jp/>

**ASTECH**  
CORPORATION

アドキャップバキュームテクノロジー株式会

<http://www.adcap-vacuum.com>

**ADCAP**

有限会社 イーオーアール

<http://www.eor.jp/>



**Electronics Optics Research Ltd.**

株式会社 オプティマ

<http://www.optimacorp.co.jp/>

Optima Corp.

カクタス・コミュニケーションズ株式会社

<http://www.editage.jp>  
<http://www.cactus.co.jp>

**editage**

Helping you get published

キャンベラジャパン株式会社

<http://www.canberra.com/jp/>



**CANBERRA**

クリムゾンインタラクティブプライベートリミテッド

<http://www.enago.jp/>  
<http://ulatus.jp/>  
<http://www.voxtab.jp/>

**enago**<sup>™</sup>

株式会社 サイエンス ラボラトリーズ

<http://www.scilab.co.jp/>



**株式会社 サイエンス ラボラトリーズ**

真空光学株式会社

<http://www.shinku-kogaku.co.jp/>



スペクトラ・フィジックス株式会社

<http://www.spectra-physics.jp/>



ソーラボジャパン株式会社

<http://www.thorlabs.jp/>



ツジ電子株式会社

<http://www.tsujicon.jp/>



株式会社東京インスツルメンツ

<http://www.tokyoinst.co.jp/>



株式会社東和計測

<http://www.touwakeisoku.co.jp/>



株式会社トヤマ

<http://www.toyama-jp.com/>



株式会社 ナバテック

<http://www.navatec.co.jp/>



仁木工芸株式会社

<http://www.nikiglass.co.jp/>



伯東株式会社

<http://www.g5-hakuto.jp/>



丸善株式会社

<http://kw.maruzen.co.jp/>



丸菱実業株式会社

<http://www.ec-marubishi.co.jp/>

**丸菱実業株式会社**

MARUBISHI CORPORATION

株式会社 ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション

<http://www.labo-eq.co.jp/>



# しょうとつ

## 第10巻 第5号

### 目次

(シリーズ) 宇宙と原子 第九回 最初の星はどうやって出来たか 市川 行和 ...107 —電子と陽子だけから星を作る方法—	
(シリーズ) 短波長自由電子レーザーによる原子分子光物理 極紫外光によるヘリウムの2光子電離における光電子角度分布 石川 顕一, 上田 潔...110	
(若手奨励賞受賞研究) ポジトロニウム負イオンの光脱離とポジトロニウムビーム生成への応用 満汐 孝治 ...118	
(総説) ガラスキャピラリー光学系のビーム通過特性とマイクロビーム応用 池田 時浩 ...125	
(原子衝突のキーワード) イオン移動度 日高 宏 ...145	
(原子衝突のキーワード) 阻止能と線エネルギー付与 土田 秀次 ...146	
(原子衝突の新しい風) 満汐 孝治 ...147	
原子衝突若手の会 第34回秋の学校 開催のお知らせ 第34回 秋の学校開催事務局 ...148	
国際会議発表奨励事業に関するお知らせ 庶務幹事 ...148	
「しょうとつ」原稿募集 編集委員会事務局 ...149	
ユーザー名とパスワード ...149	

## 「宇宙と原子」

### 第九回 最初の星はどうやって出来たか —電子と陽子だけから星を作る方法—

市川行和

yukitikawa@nifty.com

平成 25 年 6 月 24 日原稿受付

宇宙初期に存在した星間物質の密度揺らぎのなかで、特に高密度のところは自らの重力で収縮するのが星形成の出発点である。星ができるためには、核融合が始まる程度まで密度(と温度)が上昇する必要がある。重力収縮により断熱圧縮が生じると、温度と密度の上昇により熱運動による圧力が大きくなる。この圧力は重力収縮を抑制する方向に働くため、熱を放出しないと星形成に必要な密度まで重力により収縮することができない。熱放出で重要な役割を果たすのが原子分子過程で、特に温度が低いところでは主役となる。星間ガスを構成する原子分子間の熱衝突で原子分子を励起し、それが脱励起する際に電磁波(光)を放出する。この光が雲の外へ出てゆけば熱エネルギーを外界へ放出することができる。

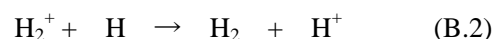
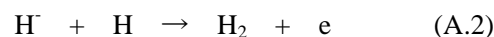
ビッグバン後の宇宙は、電子や陽子などの素粒子や簡単な原子の原子核のみから成っていた。しかし、約 40 万年後に電子と陽子が結合して水素原子ができ始める。やがて水素原子の密度が  $10^4 \text{ cm}^{-3}$  程度になった頃、最初の星の形成が始まった。原料は大部分が H で、He が約 8 %、その他わずかな D, Li, Be がある。中性原子になりそこなった電子や陽子があり、電離度は  $10^{-4}$  程度である。なお、ガスの温度は 100 K 程度とされている。このような環境で星を作るにはどうすれば良いだろうか [1]。

星形成に不可欠な熱の放出をどうするかがカギである。上述のような材料と温度で有効な放射冷却の方法は、分子を作ってその回転遷移に伴う放射を使うことである。具体的には、水素分子を作って  $J = 2 \rightarrow 0$  に伴う  $28 \mu\text{m}$  の遠赤外線

放射を利用する。 $J = 0 \rightarrow 2$  の励起に要するエネルギーは 44 meV であり、100 K 程度でもわずかながら励起できる。そこで問題は次の 2 点になる：

- (1)  $\text{H}_2$  をいかにして作るか
- (2)  $\text{H}_2$  の回転励起による冷却の効率はどれだけか

まず  $\text{H}_2$  の生成を考えよう。本シリーズ第 6 回で述べたように、通常の星間雲では固体微粒子の表面を使って  $\text{H}_2$  を作る。しかし宇宙の初期には微粒子は存在しない。そこで次の二通りの方法が考えられた。



反応系 (A) では電子が、(B) では  $\text{H}^+$  が触媒の役目を果たしており、その意味で反応系(A)、(B)の効率は両者とも水素原子の電離度に比例する。(A)、(B) 両者とも 1 番目の光放射を伴う反応(A.1, B.1)が遅くて全体の進行を支配している。それぞれの反応速度定数(いずれも温度 100 K では)

$$k(\text{A.1}) = 1 \times 10^{-16} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$$

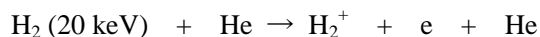
$$k(\text{B.1}) = 1 \times 10^{-19} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$$

であり、(A) の方が圧倒的に早い [2]。ただ、これまでは (A.2) の反応速度が良くわかっていな

かった。

(A.2) の反応速度についてはこれまでに flowing afterglow 法を用いて決めた実験値が 3 件報告されている。それらは誤差の範囲で一致するが、いずれも 300 K での結果であり、温度依存性はわからない。一方、広い温度範囲でいくつかの計算が行われているが、それらの結果は互いに一致しない。また実験値との一致も必ずしも良くない(詳しくは文献 [3] を参照)。しかし最近、新しい実験結果が報告された。以下その要点を紹介しよう [4, 5, 6]。

まずデュオプラズマトロンを使った負イオン源から H<sup>-</sup> を引き出して 10 keV に加速する。これにレーザー(975 nm)を当てて電子を剥ぎ取り H<sup>0</sup> ビームを生成する。約 7.5 % の H<sup>-</sup> が H<sup>0</sup> になる。同時に電場をかけて H<sup>-</sup> を減速し、H<sup>0</sup> ビームと H<sup>-</sup> ビームの間に速度差をつける(合流ビーム実験)。電場を変えることで H<sup>0</sup> と H<sup>-</sup> の間の相対エネルギーを 3.7 meV から 1 eV (文献 [6] ではさらに 4.8 eV まで)の範囲で変化させる。H<sup>0</sup> ビームと H<sup>-</sup> ビームをしばらくいっしょに走らせると、その間に (A.2) の過程が起こり、H<sub>2</sub> が生成される。できた H<sub>2</sub> を検出するには He ガス中を通して電子を剥ぎ取る。すなわち



により生成された H<sub>2</sub><sup>+</sup> を検出する。この過程の断面積はわかっているので、それから元の水素分子の量を推定することができる。なお、過程 (A.2) の起こる前の水素原子の量は、H<sup>0</sup> ビームが高速なので直接測れる。

この実験で求められた断面積を使って (A.2) の反応速度定数を求め、それをこれまでの実験の結果と比較したのが図 1 である。これまでの実験値は他に 2 件あるが、不確かさが大きい(factor 2 の精度)ので、ここには示していない。今回得られた値は誤差を考慮すればこれまでの結果と大きくは違わないが、温度依存性が得られたことは画期的である。今後この結果は星生成のモデル計算に重要な役割を果たすであろう。

次に H<sub>2</sub> の回転励起による放射冷却の効率をみてみよう。通常は、圧倒的に多い水素原子と

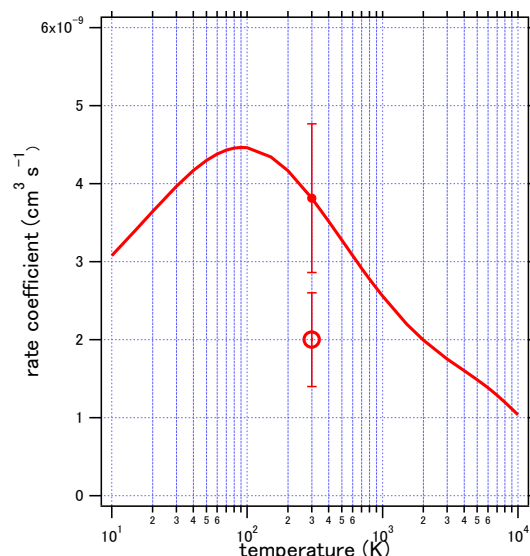


図 1: 反応過程 (A.2) の速度定数. 実線は合流ビーム実験の結果 [4,5]. その精度を示すために、300 K のところだけ誤差棒を付けた。○は従来の実験値で 300 K での値である [7]。

の衝突による回転励起を考える。この過程の断面積について実験値はいまのところ存在しない。理論計算はかなりあるが、ひとえに H + H<sub>2</sub> の相互作用ポテンシャルをいかに正確に求めるかにかかっている。Glover ら [8] は最新の理論値を基に冷却関数を求めた。彼らは同時に H 以外の粒子(He, H<sub>2</sub>, e, H<sup>+</sup>)との衝突の寄与も計算した。水素分子の回転励起に伴う単位時間当たりの放射冷却率は

$$\Lambda = \sum_s \Lambda(s \rightarrow \text{H}_2) n(s) n(\text{H}_2)$$

と書ける。ここに n(s) は粒子 s の密度である。s = H, He, e, H<sup>+</sup> の場合の  $\Lambda(s \rightarrow \text{H}_2)$  の値を図 2 に示す。電子および陽子による水素分子の回転励起断面積は実験値があるのでそれを使う。荷電粒子、特に陽子による励起確率は中性原子によるそれよりもかなり高い。電離度が 10<sup>-4</sup> 程度であることを考慮しても低温では決して無視できない。He の数は H の 8 % 程度であるが、やはり低温では効果があるだろう。この図には示していないが、水素分子同士の衝突による回転励起は He によるものと同程度であり、水素分子の数が少ない間は無視できる。一方水素分子の数が多くなると、回転励起した水素分子が他の水素分子との衝突で脱励起する確率が高くなる。すな



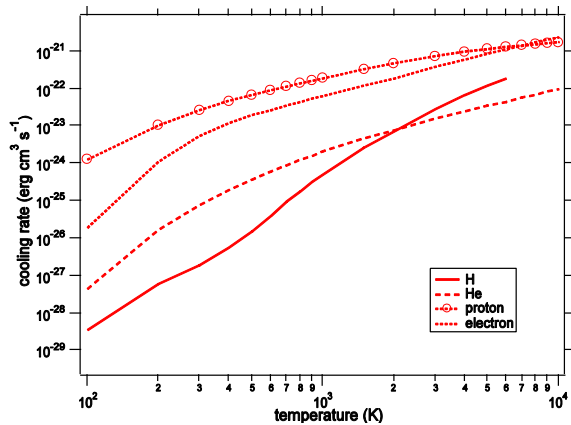
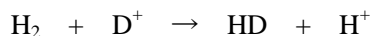


図 2:  $H_2$  の回転励起による放射冷却率( $\Lambda(s \rightarrow H_2)$ ). 水素原子, ヘリウム, 電子, 陽子衝突によるものを比較. 文献 [8] の値を基に作図.

わち水素分子の回転状態は熱平衡になり, それに基づいた冷却関数の計算が必要になる.

ここまでは  $H_2$  による冷却を考えた. 宇宙の初期にはわずかだが重水素  $D$  も存在し, したがって  $HD$  ができる.  $HD$  はきわめて小さいが有限の双極子モーメントをもち( $8.5 \times 10^{-4} D$ , [9] 参照), 回転遷移  $J=1-0$  は許容遷移となる. その遷移確率は  $H_2$  の  $J=2-0$  遷移(四重極子遷移)と較べると 3 桁も大きい (Dalgarno と Wright [10] はこのことを最初に指摘し, これを使って宇宙における  $HD$  の観測を行うことを提案した. ただし, 彼らの求めた遷移確率は後のより詳しい計算とくらべると 2 倍ほど小さい. [11] 参照). また  $HD$  の  $1-0$  遷移の波長は  $112 \mu m$  [10] であり対応する励起エネルギーは  $11 meV$  と  $H_2$  の  $2-0$  遷移と較べて小さく,  $100 K$  程度では圧倒的に  $HD$  の方が励起しやすい. 問題は  $HD$  の量がどのくらいあるかということである. 宇宙初期の  $D/H$  は  $10^{-5}$  程度といわれている. しかしいったん  $H_2$  ができると



により  $HD$  が生成される(これは低温では発熱反応である). その結果  $HD/H_2$  は  $10^{-3}$  程度になる [2]. この程度の  $HD$  があれば, 上記の事情を考慮すると  $HD$  による冷却は無視できない. しかし詳細は  $D$  を含むモデル計算が必要で, そのためには  $D$  を含む素過程の精度の高いデ

ータが要る.

以上, 宇宙初期の星形成にはさまざまな原子分子過程がからんでおり, それらの知識が形成過程の理解のためには不可欠である [2]. 関与する原子分子は簡単なものばかりであるが, 温度範囲がかなり広いので精密な研究には困難が伴う. また, モデル計算や観測の進歩とともにより細かいデータが必要となり, 従来の原子分子研究の見直しが要求されることがある. いずれにしても, 原子分子物理学の大きなテーマである.

## 参考文献

- [1] T. Abel, Phys. Today April 2011, p.51.
- [2] D. Galli and F. Palla, Astron. Astrophys. **335**, 403 (1998).
- [3] S.C.O. Glover et al., Astrophys. J. **640**, 553 (2006).
- [4] H. Bruhns et al., Phys. Rev. A **82**, 042708 (2010).
- [5] H. Kreckel et al., Science **329**, 69 (2010).
- [6] K.A. Miller et al., Phys. Rev. A **84**, 052709 (2011).
- [7] O. Martinez Jr. et al., Astrophys. J. **705**, L172 (2009).
- [8] S.C.O. Glover and T. Abel, Mon. Not. R. Astron. Soc. **388**, 1627 (2008).
- [9] W.R. Thorson et al., Phys. Rev. A **31**, 34 (1985).
- [10] A. Dalgarno and E.L. Wright, Astrophys. J. **174**, L49 (1972).
- [11] H. Abgrall et al., Astron. Astrophys. Suppl. **50**, 505 (1982).



## 短波長自由電子レーザーによる原子分子光物理 極紫外光によるヘリウムの2光子電離における光電子角度分布

石川顕一<sup>1\*</sup>, 上田潔<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京大学大学院工学系研究科附属光量子科学研究センター 〒113-8656 東京都文京区本郷7-3-1

<sup>2</sup> 東北大学多元物質科学研究所 〒980-8577 仙台市青葉区片平二丁目1番1号

ishiken@atto.t.u-tokyo.ac.jp

平成25年7月15日原稿受付

自由電子レーザー技術の進歩によって、フェムト秒レーザーパルスによる原子や分子の多光子過程を、極紫外領域で調べることができるようになった。本稿では、ヘリウム原子の2光子電離における光電子角度分布の理論研究を紹介する。2光子電離は最も基本的な非線形過程の1つであるが、共鳴パスと非共鳴パスの競合という視点からパルス幅依存性や波長依存性を考察すると、従来の光源ではとらえられなかった新しい物理が見えてくる。

### 1. はじめに

2光子電離は、最も基本的な非線形光学過程でありながら、何十年にもわたり興味の絶えない重要な研究分野である。近年、高次高調波や自由電子レーザー (FEL) といった、高強度・超短パルスの極紫外光源が登場したことで、極紫外領域における非線形光学が、新たな研究領域として大きく拓かれた。代表的な極紫外 FEL としては、ドイツの FLASH がある。我が国でも Spring-8 Compact SASE Source (SCSS) 試験加速器が 51-61 nm の極紫外光を発生していた [1, 2] が、現在はアップグレードのためにシャットダウン中である。これらはいずれも時間的にはコヒーレントではない SASE 光源であるが、ごく最近、イタリアで、高次高調波でシードした時間的にもコヒーレントな FEL 光源 FERMI の供用が開始された。これらの光源によって、ヘリウム原子や窒素分子など、従来よりもイオン化ポテンシャルの大きい原子・分子での2光子電離の実験が可能になった。特に、ヘリウムは、アルカリ原子等とは違って電子構造がシンプルなため、詳細なシミュレーションと実験との比較が可能である。また、 $1s2p^1P$ ,  $1s3p^1P$ ,

$1s4p^1P$  励起状態のエネルギーとイオン化エネルギーは、それぞれ 21.2 eV, 23.1 eV, 23.8 eV, 24.6 eV で、対応する波長はそれぞれ 58.5 nm, 53.7 nm, 52.1 nm, 50.4 nm で極紫外 FEL の波長領域とよくマッチしている。これらの理由から、極紫外 FEL や高次高調波を用いたヘリウムの多光子電離の実験が、活発に行われている。

ヘリウムの2光子電離で生成する光電子波束は  $s$  と  $d$  の部分波からなり、それらの振幅比と相対位相は光電子角度分布と関係づけられる (第2節参照)。一方、各部分波の複素振幅は、共鳴準位の実励起をともなう共鳴パスと、他の中間準位を経由する非共鳴パスの寄与からなる (第3節参照)。従って、実験で測定できる光電子角度分布を、両パスの寄与と関連づけて議論することができる。(共鳴遷移が飽和しない程度の) 時間幅の長いパルスの場合、波長によってどちらか一方のパスが支配的であるが、FEL から発生するようなフェムト秒パルスの場合には、両方のパスがともに存在する。本稿では、共鳴パスと非共鳴パスの競合が光電子の放出角度分布に及ぼす影響を、2次の時間依存摂動論と、時間依存シュレーディンガー方程式 (TDSE) に基

づいた第一原理シミュレーションによって調べた研究 [3, 4] について紹介する.

## 2. 光電子角度分布 (PAD)

ヘリウム原子の2光子電離の場合, 光電子の放出角度分布  $I(\theta)$  は, 極紫外光の偏光と電子が放出される方向のなす角度を  $\theta$  とすると,

$$I(\theta) = \frac{\sigma}{4\pi} [1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta)], \quad (1)$$

と表される [5]. ここで,  $\sigma$  は全断面積,  $\beta_2, \beta_4$  は, それぞれ, 2次 ( $P_2$ ) および4次 ( $P_4$ ) のルジャンドル多項式に付随する異方性パラメーターである.

一方, 光電子角度分布は,  $s$  部分波と  $d$  部分波の干渉の結果であるから, それぞれの部分波の複素振幅を  $c_0, c_2$  とすれば,

$$I(\theta) \propto |c_0 e^{i\eta_0} Y_{00}(\theta) - c_2 e^{i\eta_2} Y_{20}(\theta)|^2, \quad (2)$$

の関係がある. ここで  $\eta_l$  は, 方位量子数  $l$  で対応する固有エネルギーを持つ連続状態の波動関数における (クーロン位相を含む) 位相のずれである. なお,  $I(\theta), \sigma, \beta_2, \beta_4, c_l, \eta_l$  は光電子のエネルギーに依存する. 超短パルスの場合はスペクトルに幅があるので, 式 (1), (2) は光電子のエネルギーについて積分する必要がある. 式 (2) の中で球面調和関数にかかる因子  $c_l e^{i\eta_l}$  を,  $c_l$  と同じ絶対値を持つ実数  $\tilde{c}_l$  を用いて  $\tilde{c}_l e^{i\delta_l}$  と書いてみよう. 位相  $\delta_l$  は,  $\tilde{c}_l$  を正 ( $\tilde{c}_l = |c_l|$ ) にとれば  $\delta_l = \arg c_l + \eta_l$ , 負 ( $\tilde{c}_l = -|c_l|$ ) にとれば  $\delta_l = \pi + \arg c_l + \eta_l$  と書ける ( $\tilde{c}_l$  を単に絶対値とせず, 正負両方を考える理由は下に述べる). 式 (2) は,

$$I(\theta) \propto |\tilde{c}_0 e^{i\delta_0} Y_{00}(\theta) - \tilde{c}_2 e^{i\delta_2} Y_{20}(\theta)|^2, \quad (3)$$

と書き換えることができる.

$Y_{10}(\theta) = \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi}} P_l(\cos \theta)$  の関係に注意して, 式 (1) と (3) を比較すると,  $s$  波と  $d$  波の振幅比  $W = \tilde{c}_0/\tilde{c}_2$  および相対位相  $\delta = \delta_0 - \delta_2$  は, 異方性パラメーター  $\beta_2, \beta_4$  と,

$$\beta_2 = \frac{10}{W^2 + 1} \left[ \frac{1}{7} - \frac{W}{\sqrt{5}} \cos \delta \right], \quad (4)$$

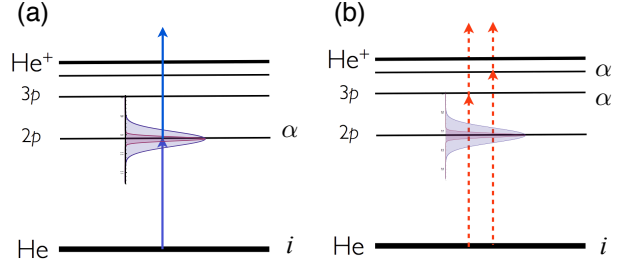


図 1: (a) 共鳴パスと (b) 非共鳴パスのイメージ. ただし (a) も,  $2p$  と共鳴でないスペクトル成分にとっては非共鳴パスであることに注意が必要である (本文参照).

$$\beta_4 = \frac{18}{7(W^2 + 1)}, \quad (5)$$

で関係づけられることが分かる. つまり, 光電子角度分布を測定して  $\beta_2, \beta_4$  を抽出すれば,  $s$  波と  $d$  波の振幅比と相対位相を求めることができるのである.

## 3. 時間依存摂動論

式 (2) において, 位相のずれ  $\eta_l$  は固有関数の属性であるから, 光パルスのパラメーターとは無関係である. それでは, 複素振幅  $c_l$  は, パルスの時間波形  $E(t)$  からどのように決まるであろうか. 2次の時間依存摂動論によれば, 終状態  $f$  (固有エネルギー  $\hbar\omega_f$ ) の複素振幅  $c_f$  は,

$$c_f = -\frac{1}{\hbar^2} \sum_{\alpha} \int_{-\infty}^{\infty} \mu_{f\alpha} e^{i\omega_{f\alpha} t} E(t) \left( \int_{-\infty}^t \mu_{\alpha i} e^{i\omega_{\alpha i} t'} E(t') dt' \right) dt, \quad (6)$$

と表される. ここで,  $i$  と  $\alpha$  はそれぞれ始状態 (固有エネルギー  $\hbar\omega_i$ ) と中間状態 (固有エネルギー  $\hbar\omega_{\alpha}$ ) を,  $\mu_{f\alpha}$  等は双極子遷移行列要素を表し,  $\omega_{f\alpha} \equiv \omega_f - \omega_{\alpha}$  等である. 和は, 束縛状態, 連続状態を問わず, すべての中間状態  $\alpha$  についてとる (連続状態については, 状態密度をかけて積分する).  $t'$  および  $t$  に関する積分は, それぞれ1個目および2個目の光子の吸収に対応している.

式 (6) は, 電場波形のフーリエ変換  $\hat{E}(\omega)$  を用いれば, スペクトル領域の表現,

$$c_f = -\frac{1}{\hbar^2} \sum_{\alpha} \mu_{f\alpha} \mu_{\alpha i} \left[ \pi \hat{E}(\omega_{f\alpha}) \hat{E}(\omega_{\alpha i}) \right]$$

$$-iP \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\hat{E}(\omega)\hat{E}(\omega_{fi}-\omega)}{\omega_{\alpha i}-\omega} d\omega \quad (7)$$

に書き換えることができる [6].  $P$  はコーシーの主値を表す. 第1項は, 共鳴遷移  $i \rightarrow \alpha$  と共鳴遷移  $\alpha \rightarrow f$  の寄与の積である. すなわち, 図1(a)のように, パルスのスペクトル内にある準位が共鳴励起され, その準位がさらに共鳴遷移によってイオン化される状況に対応している. この過程を, **共鳴パス**と呼ぶことにする. 一方, 第2項は, 中間準位  $\alpha$  への遷移と共鳴でないスペクトル成分の寄与である. この過程を, **非共鳴パス**と呼ぶことにする. 図1(b)のようにパルスのスペクトル外の準位を経由する過程に加え, スペクトル内にある中間準位 (図1の場合  $2p$ ) を経由する場合であってもそれと共鳴でないスペクトル成分 ( $\omega \neq \omega_{\alpha i}$ ) からの寄与は非共鳴パスである.

一般のパルス波形に対して, 式(6)や(7)中の積分を実行することは容易ではないが, 時間波形がガウス型で,  $\omega_{fi}$  が中心周波数  $\omega_c$  のちょうど2倍の場合 ( $\omega_{fi} = 2\omega_c$ ) には, 以下のような解が得られる.

$$c_f = -\frac{\pi E_0^2 T^2}{\hbar^2} \sum_{\alpha} \mu_{f\alpha} \mu_{\alpha i} \left[ e^{-\Delta_{\alpha}^2 T^2} - i \frac{2}{\sqrt{\pi}} F(\Delta_{\alpha} T) \right]. \quad (8)$$

ここで,  $E_0$  はピーク電界振幅,  $T$  は半値全幅パルス幅  $T_{1/2}$  と  $T_{1/2} = 2\sqrt{\ln 2} T$  で関係づけられる時間幅,  $\Delta_{\alpha} = \omega_{\alpha i} - \omega_c$  は中間準位  $\alpha$  に対する中心周波数のデチューニングである. また,  $F(x) = e^{-x^2} \int_0^x e^{t^2} dt$  はドーソン (Dawson) の積分で, 原点近傍では  $F(x) \approx x$ , 原点から遠いところでは  $F(x) \approx 1/2x$  の性質を持つ. 式(8)において第1項が共鳴パスに, 第2項が非共鳴パスに対応することは,  $\Delta_{\alpha}$  に対する依存性から物理的にも納得できる. 第2項は虚数単位  $i$  を含むことから, 共鳴パスと非共鳴パスの寄与は位相が  $\pi/2$  だけ異なっている. したがって, 両者の相対的な寄与は,  $\arg c_f$  を通して,  $s$  波と  $d$  波の相対位相  $\delta$ , そして光電子角度分布に影響する. 共鳴パスと非共鳴パスの一方が支配的な場合には  $c_0/c_2$  は実数, すなわち  $s$  波と  $d$  波の位相

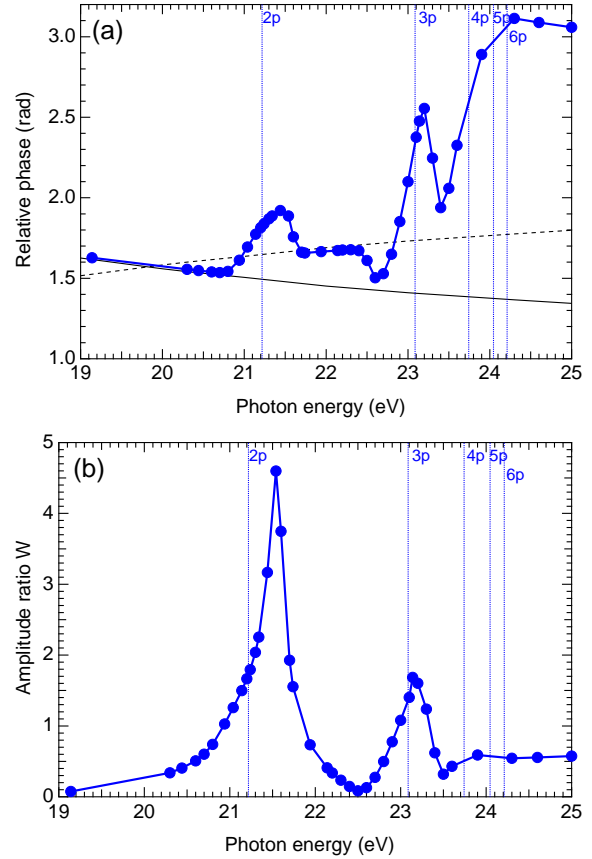


図2: パルス幅7フェムト秒のガウス型パルスの場合の, (a) 相対位相  $\delta$  と (b) 振幅比  $W$  の光子エネルギー依存性. (a) における細い実線と破線は, それぞれ中心波長に対応する光電子エネルギーでの  $\eta$  と  $\pi - \eta$  の理論値 [9] である.

のずれの差を  $\eta = \eta_0 - \eta_2$  と書けば  $\delta = \eta$  である (この場合, 前節で述べたように  $\tilde{c}_l$  を  $c_l$  の絶対値とするのではなく, 正負両方を考えることで  $c_0/c_2 = \tilde{c}_0/\tilde{c}_2$  とすることができ, 適している). 一方, 両方のパスの寄与がある場合には, 一般に  $\delta \neq \eta$  であり, その差が両者の競合の目安になると言える. 図1のように, レーザーパルスがある準位と共鳴な場合, その準位を経由する2段階のイオン化 (共鳴パス) だけを考えがちであるが, フェムト秒の超短パルスの場合, 以下に見るように非共鳴パスの寄与も重要になってくる.

#### 4. 波長依存性

それでは、ヘリウム原子の場合について、 $s$ 波と $d$ 波の振幅比 $W$ と相対位相 $\delta$ が、レーザー光の波長に依存してどのように変化するかを具体的に見てみよう。

フェムト秒オーダーの超短パルスを対象としていることから、ここでは、式(7)や(8)を直接使うのではなく、時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE),

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t) = [H_0 + (z_1 + z_2)E(t)]\psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t), \quad (9)$$

$$H_0 = -\frac{1}{2}\nabla_1^2 - \frac{1}{2}\nabla_2^2 - \frac{2}{r_1} - \frac{2}{r_2} + \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|}, \quad (10)$$

を直接数値シミュレーションすることで、ヘリウム原子のイオン化のダイナミクスを計算する[7, 8]. ここでレーザーの電場は $z$ 方向に直線偏光していると仮定している。

全方位量子数 $L$ , 各電子の方位量子数 $l_1, l_2$ を持つ部分波の、角度成分は Coupled spherical harmonics,

$$\begin{aligned} \Lambda_{l_1 l_2}^L(\Omega_1, \Omega_2) \\ = \sum_m \langle l_1 m l_2 - m | L 0 \rangle Y_{l_1 m}(\Omega_1) Y_{l_2, -m}(\Omega_2), \end{aligned} \quad (11)$$

で表される。ここで、 $\langle l_1 m l_2 - m | L 0 \rangle$ はクレプシュ・ゴールドマン係数である。動径成分を $P_{l_1 l_2}^L(r_1, r_2, t)$ とすれば、波動関数は、

$$\psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t) = \sum_{L, l_1, l_2} \frac{P_{l_1 l_2}^L(r_1, r_2, t)}{r_1 r_2} \Lambda_{l_1 l_2}^L(\Omega_1, \Omega_2), \quad (12)$$

と書ける。電子間のクーロンポテンシャルが、 $\frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} = \sum_{\lambda=0}^{\infty} \frac{4\pi}{2\lambda+1} \frac{r_{<}^\lambda}{r_{>}^{\lambda+1}} \sum_{q=-\lambda}^{\lambda} Y_{\lambda q}^*(\Omega_1) Y_{\lambda q}(\Omega_2)$ , (13)

と書き換えることができることに注意すれば、式(12)を式(9)に代入することで、各部分波の動径成分 $P_{l_1 l_2}^L$ の時間発展を記述する運動方程式(連立微分方程式)を導出できる。 $P_{l_1 l_2}^L$ を $(r_1, r_2)$ グリッド上の値で表し、運動方程式を数値積分することで、波動関数の時間発展を求めることができる。パルス終了後十分時間発展させると、

$|\psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t)|^2$ のイオン化している部分(原点から離れていく波束)は、原点周辺のイオン化していない部分から空間的に明確に分離する。前者を $r_1, r_2, \theta_2, \phi_1, \phi_2$ について積分することで、 $\beta_2$ と $\beta_4$ が得られる。 $I(\theta)$ は光電子のエネルギーに依存し、超短パルスの場合には光電子のエネルギーに分布があるが、ここでは2光子電離で生成する電子波束全体の角度分布を求めている。また、本稿で紹介する計算結果は、主としてピーク強度 $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>に対するものである。この強度領域では、イオン化の収量は強度の2乗に比例し、光電子角度分布は強度によらないことから、2次の摂動論がよい近似であると言える。強度を上げていくと、 $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>を超えるあたりからずれが見られるようになるものの、 $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>以下ではずれは小さい。

パルス幅7フェムト秒のガウシアンパルスについて、このようにして求めた $\delta$ と $W$ の光子エネルギー $\hbar\omega$ 依存性を、図2に示す。パルスのスペクトル(半値全幅0.26 eV)がどの準位とも共鳴していない場合、例えば $\hbar\omega \lesssim 20.8$  eVや22 eV付近では、 $\delta \approx \eta$ または $\delta \approx \pi - \eta$ となっていることが分かる。このような場合には、式(8)の右辺第1項は無視でき、非共鳴パスが支配的であるから、 $c_0$ と $c_2$ の比は実数で、

$$\begin{aligned} \frac{c_0}{c_2} &= \frac{\sum_{\alpha} \mu_{f(l=0)\alpha} \mu_{\alpha i} F(\Delta_{\alpha} T)}{\sum_{\alpha} \mu_{f(l=2)\alpha} \mu_{\alpha i} F(\Delta_{\alpha} T)} \\ &\approx \frac{\sum_{\alpha} \mu_{f(l=0)\alpha} \mu_{\alpha i} / \Delta_{\alpha}}{\sum_{\alpha} \mu_{f(l=2)\alpha} \mu_{\alpha i} / \Delta_{\alpha}} \end{aligned} \quad (14)$$

となる。2行目では $F(x)$ の漸近形を利用している。 $\Delta_{\alpha}$ は正負いずれの符号も取り得るので、 $c_0/c_2$ も正負いずれの符号も取り得る。よって、 $\tilde{c}_0$ と $\tilde{c}_2$ の符号を $W = \tilde{c}_0/\tilde{c}_2 = c_0/c_2$ となるように取れば、 $\delta = \eta$ となる。すなわち、非共鳴パスが支配的で、共鳴パスの寄与が無視できる場合には、 $s$ 波と $d$ 波の相対位相は、対応する連続固有状態の位相のずれの差に等しくなる。

式(4)と(5)の関係から、 $W$ と $\delta$ を求めようとすると、 $(W, \delta)$ と $(-W, \pi - \delta)$ を区別できないことに注意する必要がある。また、 $\delta$ と $-\delta$ も区別できない。このため図2では、 $W = |c_0/c_2|$ と

し、 $\delta$  の値を  $[0, \pi]$  の範囲で定義している。すると、本来  $W > 0, \delta = \eta$  が適している状況では図 2 では  $\delta = \eta$ ,  $W < 0, \delta = \eta$  が適している状況では図 2 では  $\delta = \pi - \eta$  となる。  $\hbar\omega \lesssim 20.8 \text{ eV}$  は前者に、22 eV 付近は後者に対応していることが分かる。

次に、励起エネルギーがパルスのスペクトル内に含まれる状況を考えてみよう。このような場合には、共鳴パスからの寄与が無視できなくなる。図 2 から、このような場合には、 $\delta$  の値は  $\eta$  からずれていることが分かる。これは、式 (7) あるいは (8) の第 1 項と第 2 項が共存し、その比率が一般に  $s$  波と  $d$  波では異なっていて、 $c_0/c_2$  が複素数となることに起因する。  $4p$  準位と共鳴になる 23.7 eV 以上では、常にいずれかの励起準位と共鳴となり、 $\delta$  は  $\eta$  からずれている。イオン化エネルギー (24.6 eV) を超えて、 $\delta$  と  $W$  が滑らかに推移していることは注目し値する。このような Rydberg manifold から連続状態への滑らかな遷移は、2 光子電離の収量 [10] や高密度プラズマの状態方程式 [11] についても見られる。

## 5. パルス幅依存性

光電子角度分布がパルス幅によってどのように変化するかを TDSE 計算した結果を、いくつかの光子エネルギーについて、図 3 に示す。また、 $\delta$  のパルス幅依存性を図 4 に示す。

光子エネルギーが 20.3 eV (波長 61 nm) の場合には (図 3(a))、スペクトル幅が  $2p$  準位にかかる場合 (2 fs) を除けば、光電子角度分布も  $\delta$  も、パルス幅にほとんど依存しないことが分かる。これは、式 (14) から予想される。また、前節で議論したように、 $\delta \approx \eta$  となる。

これに対して、 $1s2p^1P$  準位と共鳴な 21.2 eV (波長 58.5 nm) では、 $\delta$  はパルス幅に依存して変化し、これに対応して光電子角度分布も大きく変わっていることが分かる (図 3(b))。パルスの中心波長がある励起準位  $r$  と共鳴で ( $\Delta_r = 0$ )、スペクトルの範囲内に他の準位がな

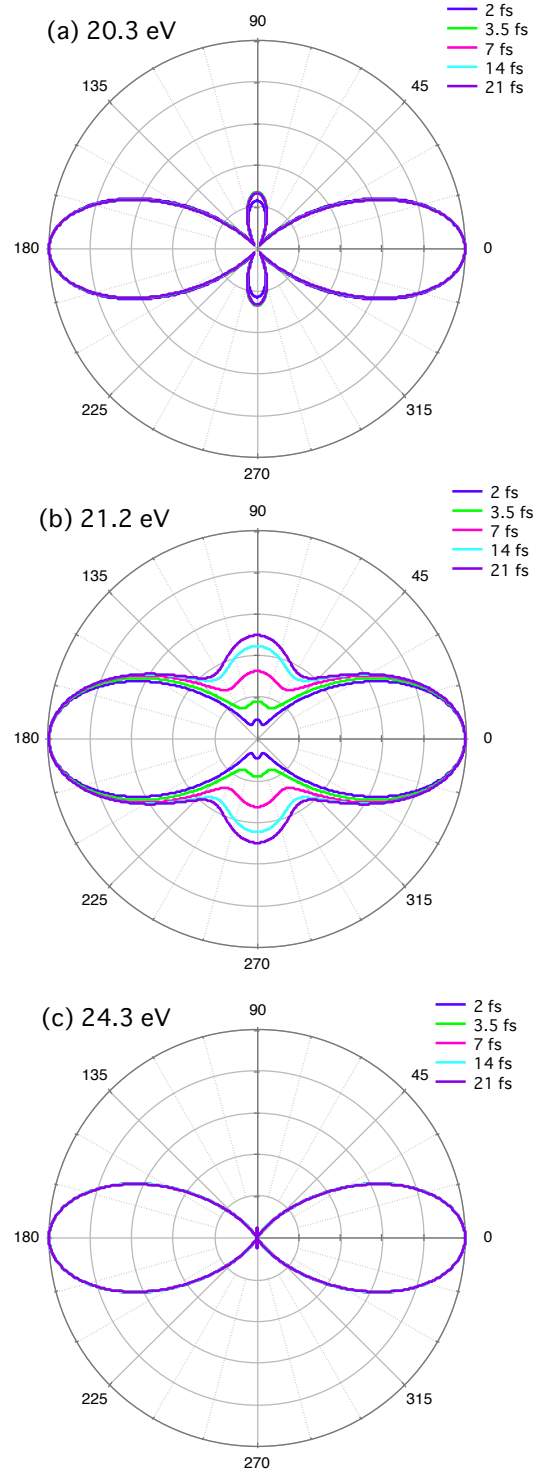


図 3: 2 光子電離光電子角度分布のパルス幅依存性

い ( $\Delta_\alpha T \gg 1, \alpha \neq r$ ) 時、式 (8) は

$$c_f = -\frac{\pi E_0^2 T^2}{\hbar^2} \left( \mu_{fr} \mu_{ri} - \frac{i}{T} \sum_{\alpha(\neq r)} \frac{\mu_{f\alpha} \mu_{\alpha i}}{\sqrt{\pi} \Delta_\alpha} \right), \quad (15)$$

と近似できる。光電子角度分布や  $\delta$  のパルス幅



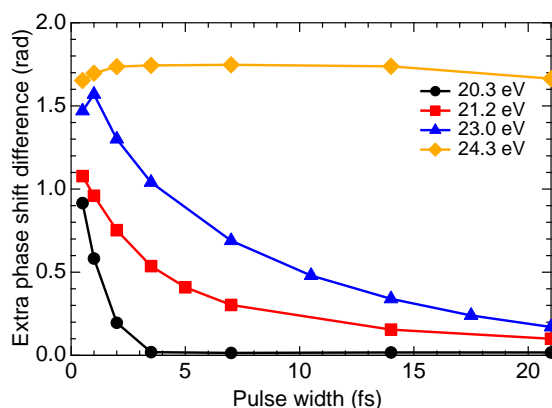


図 4: 余剰相対位相  $\delta - \eta$  のパルス幅依存性.  $\eta$  としては, 中心波長に対応する光電子エネルギーでの理論値 [9] を用いている.

依存性は, この式の第一項と第二項の  $T$  依存性の違いに起因するものとして理解できる. 同様の傾向は,  $1s3p^1P$  準位と共鳴な 23.1 eV (53.7 nm) の場合にも見られる.

光子エネルギー 24.3 eV (波長 51 nm) の結果は, 上記 2 つの場合とは異なる特徴を持っていることが分かる (図 3(c)). 図 2 で見たように,  $\delta$  は散乱位相のずれから期待される値  $\eta$  とは異なっている. これは, 21.2 eV と同じように共鳴パスと非共鳴パスが共存するためである. とところが, 21.2 eV の場合とは異なり, 光電子角度分布や  $\delta$  は, プロットの範囲ではほとんどパルス幅に依存しない. 実際, パルスのスペクトル中に多数の励起準位が含まれ準連続的と見なせる場合には, 角度分布はパルス幅にほとんど依存しないことが証明できる. これは, 中間準位が連続状態中にある 2 光子超閾電離の場合にも成り立ち,  $\delta$  は  $\eta$  とは異なった, パルス幅にほとんど依存しない値を取る. なお, 連続状態間の遷移に付随する位相は, 近年アト秒極紫外パルスを用いて観測され注目されている, 光電子放出の時間差において重要な役割を果たしている [12, 13].

## 6. FEL 光のカオス性の影響

前節までは, コヒーレント光による 2 光子電離

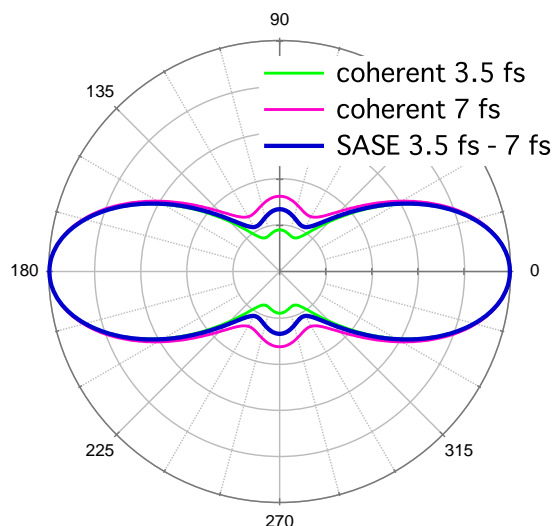


図 5: コヒーレンス時間 3.5 フェムト秒, 平均パルス幅 7 フェムト秒の場合について TDSE 計算で求めた 2 光子電離の光電子角度分布 (青太実線). パルス幅 3.5 フェムト秒 (緑実線) および 7 フェムト秒 (赤実線) のコヒーレント光に対する結果もプロットしてある.

を取り扱った. これは, 高次高調波でシードした FEL の場合に当てはまる. 一方, よく知られているように, 自己増幅自発放射 (SASE) 方式の自由電子レーザーパルスは, 時間的コヒーレンスが低く, ショット毎にカオス的にゆらいている. Partial coherence 法 [14] によって生成したそのようなパルスに対して TDSE 計算で求めた, 光電子角度分布の例を図 5 に示す. 平均スペクトルはコヒーレンス時間に対応した幅を持つガウス型, 平均時間エンベロップもガウス型を仮定している. この図に見られるように, SASE 光による光電子角度分布は, コヒーレンス時間に対応する分布と平均パルス幅に対応する分布の間に位置する傾向が, 一般に見られる. 非共鳴な場合 (例: 20.3 eV) や Rydberg manifold と共鳴な場合 (例: 24.3 eV) など, コヒーレント光に対する分布がパルス幅に依存しない波長では, SASE 光の場合にもほぼ同じ角度分布になる結果も得ている.

図 6 に,  $\delta$  について, SCS 試験加速器で実際に行われた測定と TDSE シミュレーションの比較を示す. 実験の詳細については, 文献 [15] を参

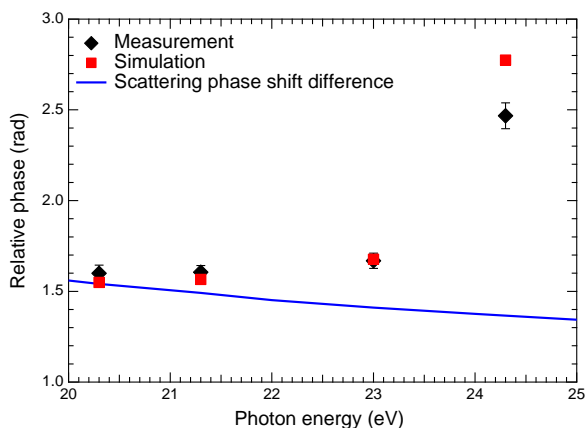


図 6: SCSS 試験加速器での測定から得られた相対位相  $\delta$  (黒のダイヤモンド) と TDSE 計算 (赤四角) との比較. 中心波長に対応する光電子エネルギーでの, 散乱位相のずれの差  $\eta$  の理論値 [9] を, 青色の実線で示している.

照して頂きたい. 計算用の時間波形は, 実験条件に合わせて, コヒーレンス時間 8 フェムト秒, 平均パルス幅 28 フェムト秒を仮定し, Partial coherence 法 [14] で生成した. 実測と計算はよく一致しており, また, 非共鳴な 20.3 eV では  $\delta \approx \eta$  であるが, それ以外では,  $\delta$  の値は  $\eta$  からずれており, 共鳴パスと非共鳴パスの共存の影響が見られる.

## 7. おわりに

本稿では, フェムト秒極紫外パルスによるヘリウム原子の 2 光子電離における光電子角度分布の理論研究について紹介した. 2 光子電離では,  $s$  波の波束と  $d$  波の波束が発生する. 共鳴パスと非共鳴パスの競合が, 部分波の振幅比や相対的な位相を通して, 光電子角度分布に影響を及ぼす. 従来光源の場合は, 共鳴パスと非共鳴パスのどちらか一方が支配的であったが, FEL のようなフェムト秒光源を使うことで, 両方のパスを共存させパルス幅などのパラメーターを通して両者の関係を制御することができる. ここではヘリウム原子を取り上げたが, 本稿の議論は, 他の原子における 1 電子過程も同様に取扱いえる普遍的なものである.

FERMI や, SCSS のアップグレード機 SCSS+

など, 高次高調波でシードした時間的にもコヒーレントな FEL 光源が登場することで, 実測と計算の比較をよりクリーンに行うことができると期待される. また, 異なる波長の FEL 光や, FEL 光とフェムト秒レーザーパルスを組み合わせて, 2 色多光子電離を起こすこともできる [16]. この場合には, パルス間の遅延時間が新しいコントロールノブとなる. 極紫外領域のフェムト秒 FEL パルスを使うことで, 原子分子分野の基礎的な概念である多光子電離について, 従来の光源では対象とすることのできなかつた新しい研究分野が開けていくものと考えられる.

本稿で紹介した研究は, 文部科学省の先端光量子科学アライアンス, X線自由電子レーザー利用推進研究課題, X線自由電子レーザー重点戦略研究課題, 物質・デバイス領域共同研究拠点の各事業, および科学研究費補助金 (課題番号 23656043, 23104708, 25286064) の支援を受けて行われたものである. また, 図 6 で紹介した測定は, 東北大学多元物質科学研究所, 京都大学大学院理学研究科, 理研放射光科学総合研究センター XFEL 研究開発部門及び高輝度光科学研究センター XFEL 研究推進室等のメンバーからなる合同研究チームによるものである.

## 参考文献

- [1] T. Shintake *et al.*, Nat. Photon., **2**, 555 (2008).
- [2] 永園ほか, しょうとつ **8**, 10 (2011).
- [3] K.L. Ishikawa and K. Ueda, Phys. Rev. Lett., **108**, 033003 (2012).
- [4] K.L. Ishikawa and K. Ueda, Appl. Sci., **3**, 189 (2013).
- [5] S.J. Smith and G. Leuchs, Adv. At. Mol. Phys., **24**, 157 (1988).
- [6] N. Dudovich, B. Dayan, S.M. Gallagher Faeder, and Y. Silberberg, Phys. Rev. Lett., **86**, 47 (2001).
- [7] M.S. Pindzola and F. Robicieux, Phys. Rev. A, **57**, 318 (1998).



- [8] K.L. Ishikawa and K. Midorikawa, Phys. Rev. A, **72**, 013407 (2005).
- [9] T.T. Gien, J. Phys. B, **35**, 4475 (2002).
- [10] K.L. Ishikawa, Y. Kawazura, and K. Ueda, J. Mod. Opt., **57**, 999 (2010).
- [11] T. Blenski and K. Ishikawa, Phys. Rev. E, **51**, 4869 (1995).
- [12] M. Schultze *et al.*, Science **328**, 1658 (2010).
- [13] K. Klünder *et al.*, Phys. Rev. Lett, **106**, 143002 (2011).
- [14] T. Pfeifer, Y. Jiang, S. Düsterer, R. Moshhammer, and J. Ullrich, Opt. Lett., **35**, 3441 (2010).
- [15] R. Ma *et al.*, J. Phys. B, **46**, 164018 (2013).
- [16] L. H. Haber, B. Doughty, and S. R. Leone, Phys. Rev. Lett., **79**, 031401(R) (2009).

## ポジトロニウム負イオンの光脱離とポジトロニウムビーム生成への応用

満汐孝治

東京理科大学理学部 〒162-0825 東京都新宿区神楽坂1-3

michishio@rs.tus.ac.jp

平成25年7月24日原稿受付

ポジトロニウム負イオンは、2個の電子と1個の陽電子から構成される3体の束縛状態である。アルカリ金属を蒸着したタンゲステン表面に低速陽電子を入射することによって、ポジトロニウム負イオンが従来よりも遥かに高い効率で表面から自発放出する現象を観測した。この新しい方法で生成したポジトロニウム負イオンにレーザー光を照射して、電子とポジトロニウムに分離する光脱離過程の観測や、これを利用したポジトロニウムビーム生成法の開発を進めている。本稿ではこれらの成果を中心として、新しいポジトロニウム負イオンの生成法とその応用研究について述べる。

### 1. はじめに

陽電子は電子とともにポジトロニウム ( $Ps$ ) と呼ばれる束縛状態を形成する。 $Ps$  に更にもう1個の電子が束縛すれば、ポジトロニウム負イオン ( $Ps^-$ ) と呼ばれる3体束縛状態が形成される。

$Ps^-$  は質量の等しい粒子のみから構成される特異な3体系であり、粒子間の質量比が水素負イオンと水素分子イオンの間に位置するユニークな束縛状態である。原子物理学の視点から眺めると、これは構成粒子の質量を無限大と仮定するような近似の適さない系であり、本質的な量子3体系を調べる上で有用である。そのため、系の束縛エネルギーや消滅率の精密計算、2重励起共鳴などの理論研究が数多く報告されており [1-4]、実験による検証が待たれている。また、 $Ps^-$  は負の電荷を帯びているため電磁場による運動制御が容易であり、エネルギー可変  $Ps$  ビームの生成に応用できるのではないかと期待されてきた [5]。

一方で  $Ps^-$  の実験研究は、 $Ps^-$  の効率的な生成法が見つかっていなかったため、また消滅に対する寿命が短いため難しく、その生成と寿命測定 [6-8] を除いて報告がなかった。

本研究では、アルカリ金属を蒸着したタンゲ

ステン (W) 表面に低速陽電子を入射することで効率的に  $Ps^-$  を作り出し、 $Ps^-$  の光脱離過程の観測実験やこれを応用した  $Ps$  ビームの開発に挑んだ。

### 2. 効率的な $Ps^-$ の生成

$Ps^-$  の生成には、電子を供給する役割をもった固体表面が用いられる。これまでに、低速陽電子ビームを炭素薄膜へ入射させ、貫通した陽電子が下流表面の電子と順次束縛して  $Ps^-$  の形成を起こすビーム・フォイル方式 [5] や、 $Ps^-$  に対して負の親和性をもった表面に陽電子を打ち込み、表面で形成された  $Ps^-$  を自発放出させる方式 [9] が報告されている。しかしいずれの方式でも、表面に到達した陽電子が2個の電子と束縛する確率は低いと考えられ、 $Ps^-$  の放出率 (入射陽電子数に対する  $Ps^-$  の放出数) の報告値は0.01%程度であった。

本研究では、 $Ps^-$  の生成機構が固体表面における電子移行反応であることに着目し、低い電子仕事関数をもつ表面を利用して  $Ps^-$  の放出率を向上できないか検討した。

光電子増倍管の光電面などに応用されている低仕事関数表面は、元素周期表の中でも特にイ

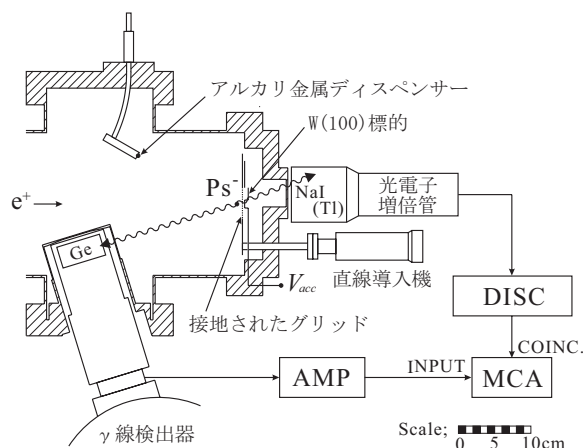


図 1: 実験装置の概略図 [12].

オン化エネルギーの小さいアルカリ金属を固体表面に蒸着させることで形成される。アルカリ金属原子が金属表面に吸着すると、両者間の電子移動に起因して吸着原子側が正、被吸着表面側が負となるような分極が生じ、基板表面がもともと持っている電気2重層の効果を低下させる。このような表面電気2重層の変化は、最表面における電子のポテンシャル障壁を低下させ、したがって仕事関数を低下させることになる [10]。正の電荷をもつ陽電子ではこの効果は逆に働き打ち消し合うが [11]、2個の電子と1個の陽電子からなる  $Ps^-$  ではその効果が電子1個分残存する。このことは、伝導電子のうち、 $Ps^-$  の生成に寄与する分のエネルギー準位の幅が広がり、 $Ps^-$  の放出量が増加することを示唆する。これを確かめるために、アルカリ金属蒸着表面に陽電子を打ち込み、 $Ps^-$  放出率の測定を行った。

図 1 に実験装置の概略図を示す。 $\beta^+$ 線源 ( $^{22}Na$ ) から放出される高速の陽電子をメッシュ状のWを通して減速・単色化し、低速陽電子ビームとして引き出して用いた。これを0.01Tの磁場で輸送して標的に打ち込み、 $Ps^-$  を生成させた。標的にはW(100)表面を用い、1500 °Cの焼鈍及び真空加熱処理による表面清浄化後にCsを蒸着して低仕事関数表面を作成した。

放出された $Ps^-$ を、電場で3 keVのエネルギーにまで加速して上流へ引き出し、自己消滅時に放出される $\gamma$ 線のエネルギーをGe検出器で測定した。 $Ps^-$ の自己消滅によって発生する $\gamma$ 線

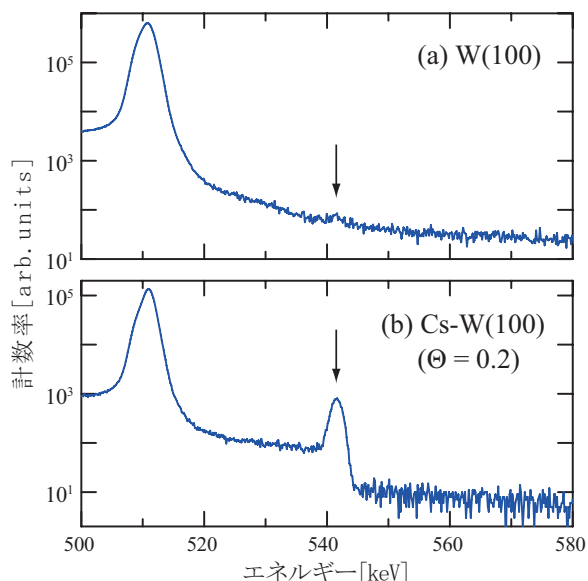


図 2: 消滅 $\gamma$ 線のエネルギースペクトル [12]. (a) 真空加熱処理後のW(100), (b) 加熱処理後にCsを蒸着させたW(100)を試料とした場合のスペクトル。 $\Theta$ は基板表面の原子数に対する吸着原子数の比である。

は2本であり、各々のエネルギーは重心系ではほぼ511 keVとなる。しかし、加速された $Ps^-$ からの消滅 $\gamma$ 線は、実験室系ではドップラーシフトして観測されるため、標的内の陽電子消滅由来の $\gamma$ 線とエネルギースペクトル上で弁別することができる。

図 2 に測定で得られた消滅 $\gamma$ 線のエネルギースペクトルを示す。図中の矢印は、 $Ps^-$ のドップラーシフトした消滅 $\gamma$ 線エネルギーの計算値を示している。Csを蒸着する前のスペクトルでも $Ps^-$ の消滅に起因するピークが僅かに見られるが、これはW(100)表面が $Ps^-$ に対して負の親和性をもつことを示している。Csを蒸着すると、このピークの強度が劇的に増大することが分かる。 $Ps^-$ の放出率が最大となったのは、Csの被覆率 $\Theta$ が基板の原子数密度でおよそ0.2原子層の場合であり、電子の仕事関数値が最小となる値にほぼ等しい [13]。このことは、放出率の上昇が仕事関数の低下と定性的に相関があることを示唆している。このときの放出率は1.25%と推定され、蒸着前と比較して2桁近い上昇がみられた。

しかし、低い仕事関数と表面の化学的安定性は

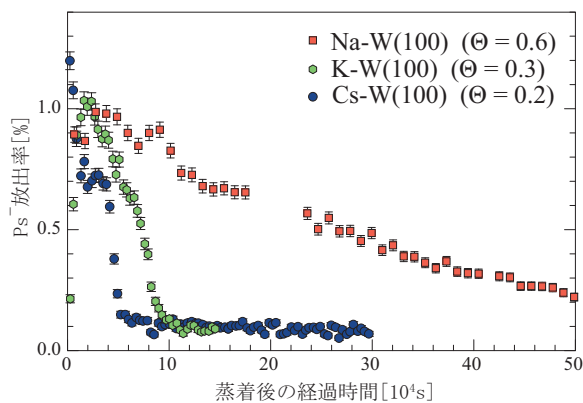


図 3:  $\text{Ps}^-$  放出率の経時変化 [12, 14].

本来相容れない性質をもつ。表面が活性であるために、 $2 \times 10^{-8}$  Pa の超高真空環境下に於いても残留気体分子と反応し、放出率は半日で 1/10 に低下する。そこで、Cs よりも化学的に安定なアルカリ金属吸着種 (K と Na) を用いて、放出率の経時変化を比較した (図 3 に示す)。アルカリ金属の被覆率は、電子の仕事関数が最小程度となるように調整した。よりイオン化エネルギーの大きい吸着種に於いて、長時間安定する傾向がみられ、Na の場合には数日にわたって 0.5 % 以上の放出率を保持し続けた。このように、Na 蒸着した W 表面を利用することで、 $\text{Ps}^-$  の放出率を長時間にわたって従来よりも遥かに高い効率で保つことを可能にした。

### 3. $\text{Ps}^-$ の光脱離

基底状態における  $\text{Ps}^-$  の電子親和力は、理論計算によると 0.33 eV であり、波長にして中赤外 (3.8  $\mu\text{m}$ ) の光に相当する。この閾波長よりも短い波長の光を  $\text{Ps}^-$  に照射すると光脱離過程、 $\text{Ps}^- + h\nu \rightarrow e^- + \text{Ps}(n)$  が誘起される ( $n$  は  $\text{Ps}$  の主量子数)。光脱離過程を通して、 $\text{Ps}^-$  の分光学的な知見が得られるだけでなく、エネルギー制御の可能な  $\text{Ps}$  ビームの生成にも応用できるため、光脱離断面積の計算も精力的に行われている [4, 17, 18]。

本研究では、Na を蒸着した W 表面を利用して効率良く生成した  $\text{Ps}^-$  にレーザー光を照射することで、 $\text{Ps}^-$  の光脱離過程の実験系を初めて実現

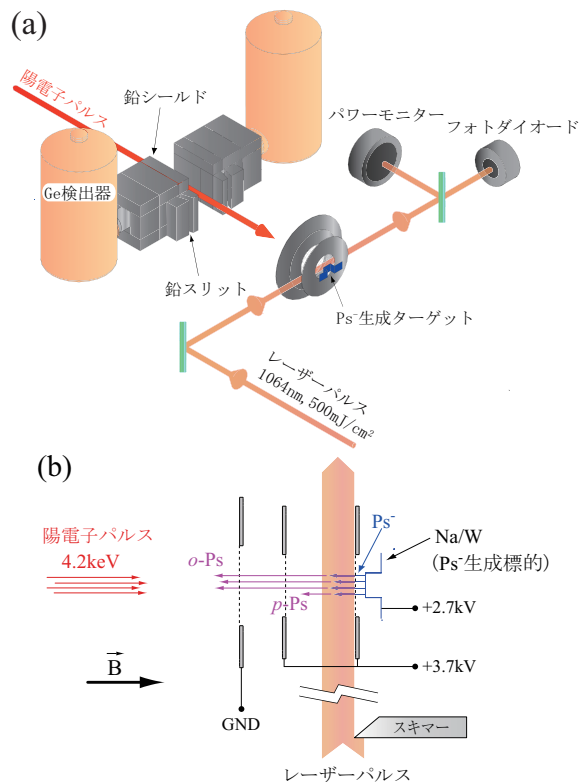


図 4:  $\text{Ps}^-$  の光脱離過程観測実験装置 [16]. (a): レーザー光と陽電子ビームの流れと  $\gamma$  線検出器の配置. (b):  $\text{Ps}^-$  生成標的の近傍の詳細.

させ、さらに光脱離断面積の見積もりを行った。

$\text{Ps}^-$  は真空中での寿命が 479 ps と短いため、レーザー光と交差させても相互作用する前に急速に自己消滅を起こしてしまう。これは、ピークパワーの大きなパルス出力 Nd:YAG レーザー (500 mJ/cm<sup>2</sup>/pulse, パルス幅 12 ns) からの赤外レーザー光を  $\text{Ps}^-$  に照射し、消滅率よりも高い光脱離率を得ることで解決できる。一方で、被照射体である  $\text{Ps}^-$  も同じ時間特性をもったパルス状にする必要が生じる。そこで、高エネルギー加速器研究機構の LINAC ベース低速陽電子ビームラインから供されるパルス幅 12 ns のパルス状陽電子ビーム [15] を利用して、パルス状  $\text{Ps}^-$  ビームを発生させ、レーザー光と交差させた。レーザー光の波長は 1064 nm、光子エネルギーは 1.165 eV であり、光脱離の閾値よりも高いが、終状態の  $\text{Ps}$  の主量子数が  $n=2$  となる閾値 (5.43 eV) よりも低い。そのため、本実験では基底状態の  $\text{Ps}$  のみが  $\text{Ps}^-$  の光脱離によって

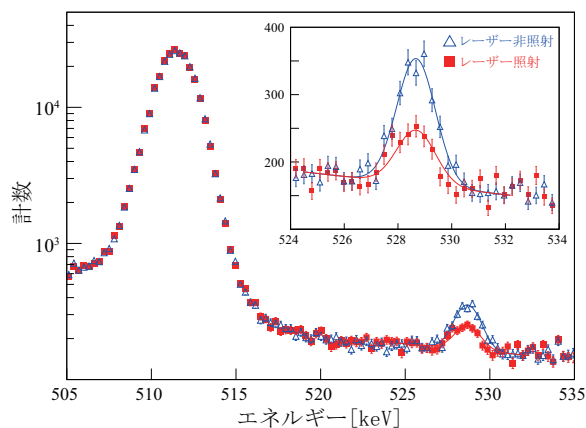


図 5: 消滅  $\gamma$  線エネルギースペクトル [19]. 赤外レーザー光の照射によって,  $\text{Ps}^-$  の消滅  $\gamma$  線に起因するピークの減衰が観測された.

生成される.

図 4 に実験装置の概略を示す. 図 1 と同様に生成した  $\text{Ps}^-$  を電場加速させ, 自己消滅時に放出される  $\gamma$  線を Ge 検出器で検出した. 但し, パルス幅 12 ns の間に発生する複数本の  $\gamma$  線が, 一度に Ge 検出器に入射してしまうと正確なエネルギー測定ができない. そのため, 幅 2 mm の狭いスリットを設けた鉛で検出器を遮蔽し, 検出効率を十分に下げることによってパイルアップを防いだ. 一方で, 検出率が低下するため長時間の測定を要し, ビーム強度やレーザー光の経時変化によってデータの定量性が議論できなくなる. そこで, レーザーの繰り返し周波数を陽電子パルスの繰り返しの半分に分周することで, レーザー照射/非照射データを交互に取得し, 入射陽電子数で規格化を行った.

図 5 にレーザー光照射/非照射条件下で測定した消滅  $\gamma$  線エネルギースペクトルを示す. 529 keV のエネルギー付近に  $\text{Ps}^-$  に起因するピークが現れているが, レーザー光の照射によってピーク強度が 43 % に減衰する様子が観測された.  $\text{Ps}^-$  は電子の光脱離によって  $\text{Ps}$  になるが, 電子と陽電子の合成系である  $\text{Ps}$  は, スピン合成によって 1 重項状態 ( $p\text{-Ps}$ ) と 3 重項状態 ( $o\text{-Ps}$ ) の 2 つのスピ固有状態に分かれる.  $\text{Ps}^-$  の光脱離によって生成される  $p\text{-Ps}$  と  $o\text{-Ps}$  の分岐比は, スピンの状態数の比に等しく 1:3 である [20].  $p\text{-Ps}$  は消滅時に重心系からみて 2 本の確定した

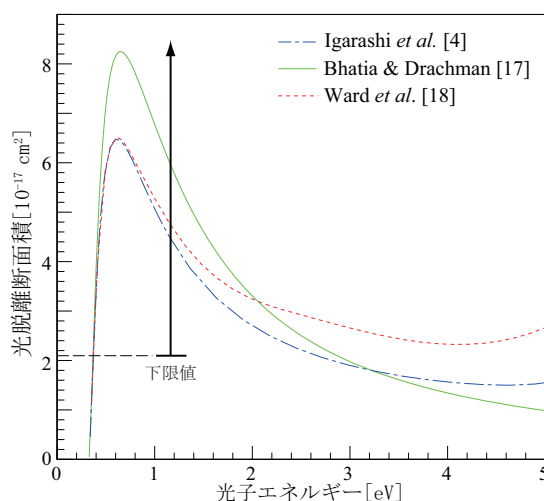


図 6:  $\text{Ps}^-$  の光脱離断面積 [19]. 各曲線は理論計算値を示す.

エネルギー (511 keV) の  $\gamma$  線を放出するのに対し,  $o\text{-Ps}$  は 3 本の連続エネルギースペクトルをもつ  $\gamma$  線を放出する. そのため, 広いエネルギー分布をもつ  $o\text{-Ps}$  由来の消滅  $\gamma$  線は,  $\text{Ps}^-$  の消滅  $\gamma$  線ピークに寄与せず,  $o\text{-Ps}$  の生成割合だけピークの減衰が生じる.

仮に全ての  $\text{Ps}^-$  が光脱離されると, ピークの強度は  $o\text{-Ps}$  と  $p\text{-Ps}$  の分岐比から 25 % に低下するはずであるが, 実際には 43 % までしか低下していない. これは,  $\text{Ps}^-$  が光子と相互作用する前に自己消滅するためである.  $\text{Ps}^-$  とレーザー光の空間分布やパルス形状, 光子数密度などの影響も含めてこの現象を解析することで, 光脱離断面積の下限値を見積もることができた (結果を図 6 に示す). 得られた結果は, 超球緊密結合法 [4] や変分法 [17, 18] による理論計算値と矛盾しないものであり, ピークの減衰が光脱離過程に由来する一つの裏付けとなる.

#### 4. $\text{Ps}$ ビーム生成への応用

従来の  $\text{Ps}$  の研究では, 物質中で形成された  $\text{Ps}$  の消滅  $\gamma$  線を検出して, そのエネルギーや時間の情報から知見を得る, いわば「消滅させる」実験が一般的であった. 他方で,  $\text{Ps}$  を粒子線として引き出して, 孤立系における原子・分子と衝突させる実験 [21] やイオン結晶表面に入射して



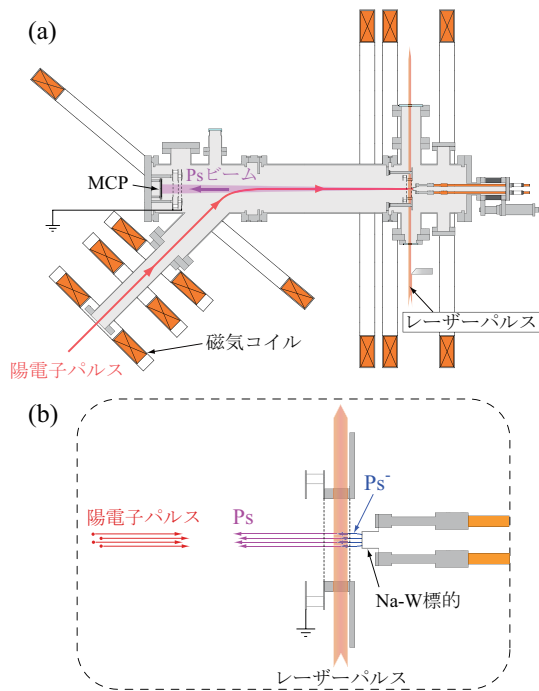


図 7: Ps ビーム発生装置 [25]. (a):装置の全体図.  
(b):光脱離領域の詳細.

表面層の分析を行う実験 [22] も報告されている。こうした研究では、陽電子と気体分子 A との電子移行反応 ( $e^+ + A \rightarrow Ps + A^+$ ) によって形成される Ps を利用しているが、標的分子の Ps 形成断面積を反映して高エネルギー化 ( $< 400 \text{ eV}$ ) が困難であることやビーム強度が低いことが課題となっている [23, 24].

本研究では Ps ビームの新規生成法として、 $Ps^-$  の光脱離過程を利用した手法の開発を行った。実験では、前述の実験と同様に高エネルギー加速器研究機構の低速陽電子実験施設から供されるパルス状陽電子ビームを利用した。図 7 に示すとおり、陽電子ビームの軌道を 45 度偏向させて Na を蒸着した W 標的に入射し、 $Ps^-$  を生成した。これを任意の電位差  $V_{acc}$  で加速させた後、レーザー光の照射によって光脱離を起こして Ps を生成した。得られる Ps のエネルギー  $E_{Ps}$  は、表面からの  $Ps^-$  の放出エネルギーが加速エネルギーに対して小さいとすると、 $E_{Ps} = 2eV_{acc}/3$  となる。短寿命の  $p$ -Ps は直ちに消滅してしまうが、長寿命の  $o$ -Ps は比較的長距離を飛行することができ、下流側に設置されたマイクロチャンネル

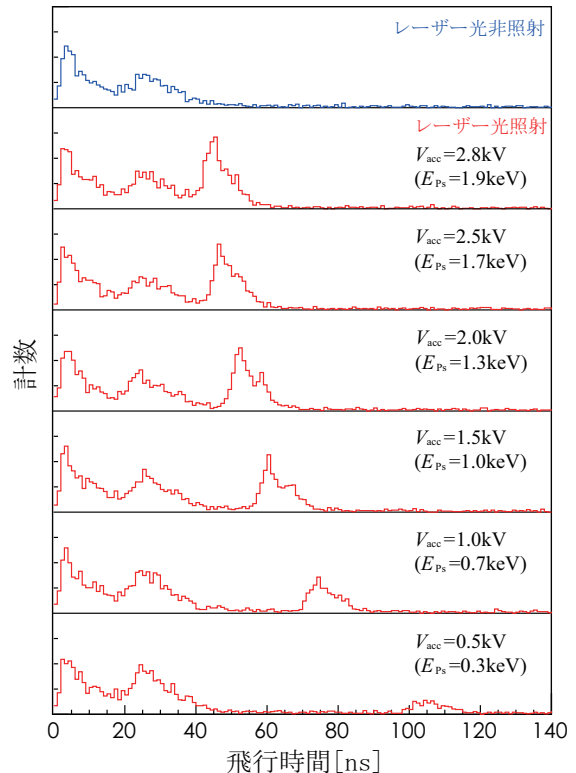


図 8: 飛行時間スペクトル [25].  $E_{Ps}$  は、 $Ps^-$  の加速電位差  $V_{acc}$  から計算される Ps のエネルギーを示す。

プレート (MCP) によって検出される。 $Ps^-$  の加速電位を変化させた際のレーザー光照射位置から MCP までの飛行時間を測定し、Ps の同定を行った。

図 8 に飛行時間スペクトルを示す。レーザー光の非照射条件に於いて 2 つのピークが確認できるが、これらはそれぞれ標的中で消滅した陽電子と真空槽に衝突した後方散乱陽電子の消滅  $\gamma$  線に由来している。レーザー光を照射すると明瞭なもう一つのピークが観測され、このピークの飛行時間が上述のエネルギーから計算される値と一致することを確認した。この結果は、光脱離によって生成された Ps の検出を示すとともに、Ps のエネルギー操作が可能であることを意味している。Ps ピークの形状に 2 つの山が見られるが、これは LINAC によって生成される陽電子ビームのパルス形状を反映していると考えられる。本研究で得られた Ps ビームのエネルギーレンジは 0.3–1.9 keV であるが、原理的に更に高いエネルギーに上げることも可能である。

MCP と遅延ライン陽極からなる位置敏感型検出器を導入して2次元プロファイルを測定した結果、ビームの角度広がりが20 mradであることを確認した。ビーム発散の要因は、表面から放出される $\text{Ps}^-$ の角度広がりと光電子反跳によるものである。また、ビームの生成効率(標的への入射陽電子数に対する $\text{Ps}$ の生成数)は、測定で得られた $\text{Ps}$ の検出率からおおよそ0.5%と推定されている。

$\text{Ps}$ を直接検出することによって $\text{Ps}^-$ の光脱離が起こっていることをより明瞭に観測し、更にエネルギー可変 $\text{Ps}$ ビームの生成を実現した。 $\text{Ps}^-$ の光脱離を駆使した $\text{Ps}$ ビームは、 $\text{Ps}^-$ の電場操作によって10 keV以上の高エネルギー化が可能である。また、高効率 $\text{Ps}^-$ 生成源と高強度パルスレーザー光の組み合わせによって、0.5%の $\text{Ps}$ ビーム生成効率が達成されており、この効率は過去のビーム生成法と比較して2桁近く高い。さらに、気体分子標的を用いる手法と異なり、超高真空環境下での動作が可能であるため、清浄な試料が要求される表面研究に最適であることも特筆すべきである。

こうした特徴を活かして、 $\text{Ps}$ を固体表面の構造探針として応用する研究を計画している。ここ10数年の間に、反射高速電子線回折法を、電子線の代わりに陽電子線を用いて行う反射高速陽電子線回折法が開発され、最表面原子層の構造分析が可能となってきた[26]。また、高速の原子線を絶縁体の表面に対してすれすれの角度で入射して反射回折像を得る研究も行われ、注目を浴びている[27,28]。我々はエネルギー可変 $\text{Ps}$ ビームを利用した同様の研究も可能になると考えている。

## 5. まとめ

アルカリ金属を蒸着したW表面に低速陽電子を入射することで、1%を超える効率で $\text{Ps}^-$ を生成させることが可能となった。この方法によって生成された $\text{Ps}^-$ に高強度レーザー光を照射することで、 $\text{Ps}^-$ の光脱離過程の観測やエネ

ルギー可変 $\text{Ps}$ ビームの生成を実現した。今後は一連の技術を用いて、 $\text{Ps}$ ビームによる固体の最表面分析や原子衝突実験への拡張も進められると共に、 $\text{Ps}^-$ の分光学的研究にも挑戦し、更に発展させていきたいと考えている。

## 6. 謝辞

本研究の遂行にあたり、終始多大なるご指導とご鞭撻を賜りました東京理科大学の長嶋泰之教授に厚く御礼申し上げます。また、本研究の遂行にあたり、高エネルギー加速器研究機構 兵頭俊夫教授、柳下明教授、和田健博士、立教大学 立花隆行博士、東京理科大学 寺部宏基氏にはご指導とご鞭撻を賜りました。ここに、厚く御礼申し上げます。本研究を遂行するにあたりご協力をいただいた、共同研究者の皆様ならびに高エネルギー加速器研究機構加速器グループの皆様にも深く感謝申し上げます。

本研究は日本学術振興会科学研究費基盤研究S(24221006)の助成を受けて行われました。

## 参考文献

- [1] A. M. Frolov, Phys. Lett. A, **342**, 430-438 (2005).
- [2] G. W. F. Drake and M. Grigorescu, J. Phys. B **38**, 3377-3393 (2005).
- [3] Y. K. Ho, Phys. Lett. A **102**, 348 (1984).
- [4] A. Igarashi, I. Shimamura, and N. Toshima, New J. Phys. **2** 17 (2000).
- [5] A. P. Mills, Jr., Phys. Rev. Lett. **46**, 717 (1981).
- [6] A. P. Mills, Jr., Phys. Rev. Lett. **50**, 671 (1983).
- [7] F. Fleischer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 063401 (2006).
- [8] H. Ceeh *et al.*, Phys. Rev. A **84** 062508 (2011).
- [9] Y. Nagashima and T. Sakai, New J. Phys. **8**, 319 (2006).
- [10] A. Kiejna and K. F. Wojciechowski, Prog.



- Surf. Sci. **11**, 293 (1981). 016104 (2007).
- [11] C. A. Murray, A. P. Mills Jr. and J. E. Rowe, Surf. Sci. **100**, 647 (1980).
- [12] Y. Nagashima, T. Hakodate, A. Miyamoto and K. Michishio, New J. Phys. **10**, 123029 (2008).
- [13] C. S. Wang, J. Appl. Phys. **48**, 1477 (1977).
- [14] H. Terabe, K. Michishio, T. Tachibana and Y. Nagashima, New J. Phys. **14**, 015003 (2012).
- [15] K. Wada, T. Hyodo, A. Yagishita, *et al.*, Eur. Phys. J. D **66**, 37 (2012).
- [16] 長嶋泰之, 満汐孝治, 日本物理学会誌 **67**, 5, 333 (2012).
- [17] A. K. Bhatia and R. J. Drachman, Phys. Rev. A **32**, 3745 (1985).
- [18] S. J. Ward, J. W. Humberston and M. R.C. McDowell, J. Phys. B **20**, 127 (1987).
- [19] K. Michishio *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 153401 (2011).
- [20] A. Igarashi, private communication.
- [21] J. Brawley *et al.*, Science **330**, 789 (2010).
- [22] M. H. Weber *et al.*, Phys. Rev. Lett. **61**, 2542 (1988).
- [23] G. Laricchia, in Positron Spectroscopy of Solids, edited by A. Dupasquier and A. P. Mills, Jr. (IOS, Amsterdam, 1995), p.401.
- [24] B. L. Brown, in Positron Annihilation, edited by R. M. Singru and P. C. Jain (World Scientific, Singapore, 1985), p.328.
- [25] K. Michishio *et al.*, Appl. Phys. Lett. **100**, 254102 (2012).
- [26] A. Kawasuso and S. Okada, Phys. Rev. Lett. **81**, 2695 (1998).
- [27] A. Schuller, S. Wethekam and H. Winter, Phys. Rev. Lett. **98**, 016103 (2007).
- [28] P. Rousseau, H. Khemliche, A. G. Borisov and P. Roncin, Phys. Rev. Lett. **98**,

## ガラスキャピラリー光学系のビーム通過特性とマイクロビーム応用

池田時浩

独立行政法人 理化学研究所 〒 351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1  
仁科加速器研究センター 応用研究開発室 生物照射チーム

tokihiro@riken.jp

平成 25 年 7 月 15 日原稿受付

ガラスや樹脂などの絶縁体でできた、内径が 100 nm～数 100  $\mu\text{m}$  の細管(キャピラリー)にキロボルトやメガボルトの電圧で加速されたイオンビームを入射すると、ある割合で、入射前の電荷や運動エネルギーを保持したまま通過して行くことが知られている。この現象を応用すれば、今まで帯電を嫌ってビーム光学系にあまり使われてこなかった絶縁体をむしろ積極的に使ってビーム偏向素子やマイクロビーム生成ツールとして利用することができる。ビームのエネルギー・速度やキャピラリーの種類によって様々な実験やシミュレーション、更には応用を目指した開発が行われている。本稿ではその現状を紹介する。

### 1. はじめに

この数年、国際会議や物理学会での発表において「キャピラリーによるビームガイド」という言葉を耳にするようになった。例えば、最近 10 年間の日本物理学会領域 1 の講演では 2005 年秋に最初の絶縁体キャピラリーによるビームガイドの発表が行われ、2006 年から 2013 年まで毎年 3～7 講演が行われてきた。

キャピラリーによるビームガイドの最初の報告は、2002 年、Stolterfoht らのグループによるもの [1] で、PET (polyethylene terephthalate) 製の厚さ 10  $\mu\text{m}$  のフォイルに作製された内径 100 nm の無数の貫通孔(マルチキャピラリーと呼ぶ)に、3 keV の  $\text{Ne}^{7+}$  ビームを通過させ、フォイルを入射ビーム軸に対してティルトさせてもビームはある割合で通過して行くこと(ガイド効果)を示した。一方、もっと高いエネルギーである 2 MeV の  $\text{He}^+$  ビームをガラス製の細い注射針(テーパ型単一ガラスキャピラリー: 入口/出口径は 800  $\mu\text{m}$  および約 0.8  $\mu\text{m}$ , 針の長さは約 5 cm)に通過させマイクロビームを生成した実験が根引らによって 2003 年に報告 [2] された。これら 2 つの報告によりキャピラリーによるビームガイドには;

キャピラリーの形状

(A1) 絶縁体のマルチキャピラリー

(A2) テーパー型単一ガラスキャピラリー  
ビームエネルギー

(B1) 低速(keV エネルギー)陽イオン

(B2) 高速(MeV エネルギー)陽イオン

というカテゴリーが登場した。まだ、(A1) のフォイルに MeV イオンを通過させた報告はほとんどないが、(A2) のテーパ型ガラスキャピラリーには低速および高速それぞれのイオンビームを通過させる実験が報告されており、通過特性の研究だけでなく出射イオンをマイクロビームとして使う応用研究も始まっている。

詳細は後述するが、高速イオンビームは低速のビームに比べ、キャピラリー内で直進性が高いため、キャピラリーをティルトさせるような使い方はせず、むしろキャピラリー軸はビーム軸に厳密に合わせて使う。ここで、エネルギーが高いため、ビームは液体中に取り出すことができ、しかも計算によりビームが止まるまでの距離(飛程)および、その揺らぎ(数  $\mu\text{m}$ )も予測できる。従って、位置選択精度の高い液体中マイクロビーム照射が容易に実現でき応用への期待が高まっている。一方、低速イオンビームは、全てのセットアップは真空槽内に限られるが、フォイルでもガラスキャピラ

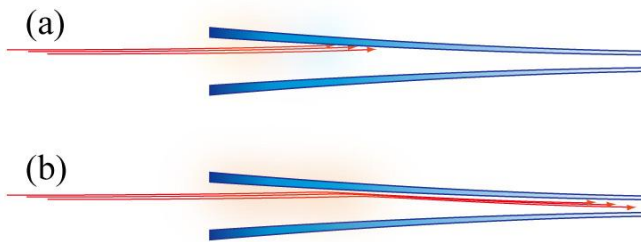


図 1:入射ビームによる自己組織化帯電: テーパー型ガラスキャピラリーの断面を青色で示した [20]. (a) キャピラリー内壁が帯電していないときにビームが入射した直後の様子. イオンは内壁に衝突し停止するが, 衝突箇所は帯電する. その後もこの衝突が繰り返される. (b) 局所的な帯電により後続のイオンが内壁に触れることなく前方に散乱された様子.

一でもある程度ティルトしてもビームは通過してくる. したがって, 上記 2 種類の形状だけでなく, テーパー無しガラスキャピラリー, 2 枚のガラス板による狭い隙間, そして樹脂製フレキシブルチューブを使った曲がり管, などいくつかの絶縁体製ビーム偏向光学が登場している.

本稿では, 絶縁体キャピラリーによるビームガイドに関して, 上記低速および高速イオンビーム, 更にその他の量子ビームを扱う. 低速イオンビームについては, 絶縁体の自己組織化帯電によるビーム通過やガイド効果が知られており, そのメカニズムとビームガイド技術やマイクロビーム生成法について概観する. このビーム速度ではガラスの帯電がキーワードともなっているため, ガラス材の電気的性質そのものについても記述を試みた. 高速イオンビームについてはテーパー型ガラスキャピラリー中の輸送メカニズムに触れたのち, マイクロビームの応用例について現在発表されているものを見ていく. そして最後に, イオンビーム以外のビーム集束やガイド効果検証の試みについても報告する.

## 2. 低速イオンビーム

絶縁体フォイルに作製されたマルチキャピラリーに, このエネルギー領域のイオンビームを入射させた最初の報告は hollow atoms (ions) の生成に関する実験で, 山崎らによって 1996 年に報告された( $\text{Al}_2\text{O}_3$  フォイル, および  $9 \text{ keV/u Ne}^{9+}$ ) [3]. その後, 入射イオンの一部が, 価数も運動エネルギーも変わることなく「無傷」でキャピラリーを通過してくるというガイド効果が, 前述のとおり,

Stolterfoht らによって 2002 年に報告された [1]. それ以降も, kV オーダーの電圧で加速されたイオンを用いるキャピラリー実験では多価イオン(低速多価イオンと呼ぶ)が用いられている.

### 2.1 入射ビームによる自己組織化帯電

低速多価イオンが, 絶縁体でできた細管の内部を, 価数も運動エネルギーも保持したまま通過する現象のメカニズムについて紹介する. 図 1 (a)で青色で示されたテーパー型ガラスキャピラリー内壁がまだ帯電していないときにイオンビームが入射した状態を表している. 低速多価イオンが物質表面に入射するとその運動エネルギーの低さゆえ, 深くは進入することができず表面から電子を受け取り, そこで停止してしまう. ところが内壁表面の絶縁性が高いために衝突ポイントに持ち込まれた正の電荷はそこに留まりつづける. この入射と内壁の帯電が繰り返されると帯電によるポテンシャルは大きくなってゆき, やがて入射イオンはそのポテンシャルによって散乱され始め内壁には触れることなく, ある確率で, 図 1 (b)のように前方に散乱されるイオンも現れる. この前方への散乱(あるいは複数回の前方散乱)によって数 cm にもわたる長い細管を価数も運動エネルギーも変わることなく「無傷」で通過してくるイオンが得られる. このようにビーム自身が絶縁体管内を通過できるようにあたかも適切な帯電分布を形成していくことは自己組織化帯電現象の一種ととらえることができる. この通過の特色として, (1) ビーム軸とキャピラリー軸は必ずしも完全には一致していなくても通過が起こる, (2) キャピラリー内壁が帯電していない状態でビームを入射すると, 最初の通過イオンが得られるまで帯電分

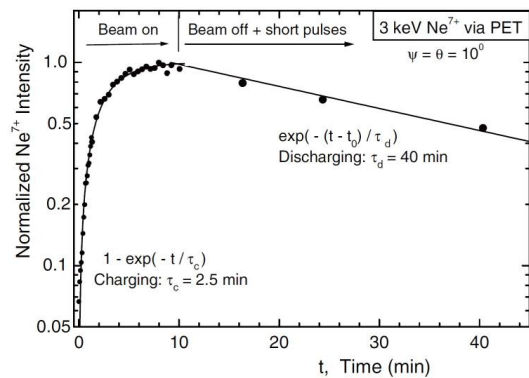


図 2: PET フォイルのマルチキャピラリーを通過した  $\text{Ne}^{7+}$  ビーム強度の時間依存性 [1]

布を形成するための時間を要する, (3) キャピラリー出口をマイクロメートルオーダーにまで細く絞れば出射ビームはマイクロビームとして使うことができる. 絶縁体と言っても内壁表面に貯まった電荷は放電により少しずつ減少していく. 絶縁体の材質によって電気伝導度はさまざまであるので帯電の寿命も数分から数時間以上のこともある. 図 1 はテーパーを持つキャピラリーを例にあげているが, テーパーが無いキャピラリーやマルチキャピラリーでも同様の現象が起こっていると考えられている.

## 2.2 絶縁体キャピラリーフォイル

ここでは冒頭に述べた Stolterfoht らの実験[1]を例に説明する. まず, 厚さ  $10 \mu\text{m}$  の PET 製フォイルに  $1 \text{ GeV}$  の高エネルギー Xe イオンを貫通させ, 更にエッチングにより内径  $100 \text{ nm}$  というナノメートルサイズのキャピラリーを多数生成し(開口率は約 4%), そのフォイルの前面と背面に厚さ  $30 \text{ nm}$  の金を蒸着してキャピラリーフォイルが作製された. この金の薄膜は, フォイル前面がビーム照射により帯電してやがて入射イオン自身がキャピラリー入口に近づけなくなる, ということを防いでいる. このようにして作製されたマルチキャピラリーはテーパー無しでキャピラリー間の距離は一定ではない. この PET フォイルに  $3 \text{ keV}$  の  $\text{Ne}^{7+}$  ビームを入射し, 通過(=出射)イオン数およびそのビーム拡がり(水平方向のみ)を静電アナライザーで測定した. 入射ビーム軸とマルチキャピラリーの軸が平行であればビームが通過

することは予想されるが, キャピラリー軸を入射ビーム軸に対して  $20^\circ$  までティルトさせても, キャピラリーの軸方向にビームがガイドされた. 出射強度はティルト角が  $10^\circ$  ではティルトなしの時に比べ約 5 分の 1, ティルト角が  $20^\circ$  では約 100 分の 1 であった. 一方, 同じ形状のフォイルでキャピラリー内壁を銀でコーティングして帯電できないようにすると, わずか  $5^\circ$  ティルトさせただけで通過強度は 100 分の 1 にも満たなかった. さらに, ビーム通過に必要な自己組織化帯電分布の生成時間と減衰時間についても報告した. 内壁表面は入射イオンビームにさらされることで帯電していくわけであるが, 帯電が強くなるにつれて内壁へのビーム衝突が減少する, すなわち電荷の供給が減ってくる. しかしながら, 同時に, 内壁に貯まった電荷は絶縁体からの放電により失われていく. この電荷の供給と放電による減少が釣り合ったとき通過ビーム強度は飽和に達しほぼ一定になると考えられる. 図 2 に示すようにティルト角が  $10^\circ$  の場合, 入射を開始すると, 出射ビーム強度は徐々に高くなっていきやがて飽和に達する. この測定で, 入射開始から約 10 分で出射強度は飽和に達し, この強度曲線を入射開始からの時間  $t$ , 時定数(立ち上がり時間)を  $\tau_c$  として,  $1 - \exp(-t/\tau_c)$  に当てはめると  $\tau_c$  は 2.5 分となった. 一方, ビーム入射を停止してからの帯電分布減衰時間の測定では, やはり出射ビーム強度の測定を利用しており, 入射停止後に数分毎に一瞬だけパルスビームを入射することで, 内壁のチャージアップを増やさない程度にビームの出射量を測定した. それによると, 内壁表面の電荷分布はすぐには消滅せず, 出射ビーム強度が飽和時の  $1/e$  に減少するまでに, ビーム停止後, 約 40 分を要した. これらの測定から, 飽和に達するまでの数分という時間は内壁の帯電分布が形成されて内壁に衝突するイオンの数がある程度減少し一定になる時間と考えることができる. ビーム停止後 40 分程度は内壁上の帯電は維持されることを考えると, この実験の入射ビームは, ビーム通過を実現するための十分な強度であったと言える. 仮に入射ビーム強度がずっと小さい値であれば, 帯電よりも放電のほうが早くなり, 帯電によるビーム通過は期待できなくなるであろう. 図 3 はティルトなしでの通過ビームプロファイルのエネルギー依存性を示す [4]. エネルギーを上げるとキャピラリー軸方向に沿って出射ビームの拡がり

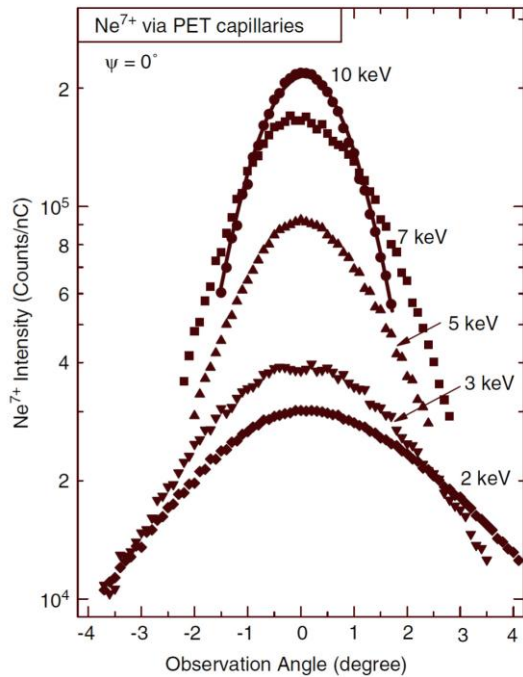


図 3: 入射エネルギーを 2 keV から 10 keV まで変えた時の  $\text{Ne}^{7+}$  ビームの通過特性 [4]: キャピラリーをティルトさせていないときの出射ビームの角度分布を示す. 運動エネルギーが高いほど出射ビームの指向性が高い.

が小さくなっていくことが分かる. ちなみに通過ビーム強度そのものはエネルギーによらずほぼ一定であった. 出射ビームが広がるのはキャピラリー出口付近の帯電によるポテンシャルのせいである. 出射ビームのビーム拡がり測定することは, 出口付近でのイオンの散乱方向を測定することに相当し, 帯電量の評価にもつながる. この報告[4]では内壁の帯電によるポテンシャルとビームの運動エネルギーの横方向の成分  $E_{\perp} = (1/2) m (v \sin \alpha)^2 = E \sin^2 \alpha$  を比較するモデルを導入している. ここで,  $\alpha$  はキャピラリー軸と出射イオンの向きの間の角度で,  $m$ ,  $v$ ,  $E$  はそれぞれイオンの質量, 速度, 運動エネルギーである. 詳細は文献[4]およびその中の参考文献を参照されたい. 他の絶縁体では,  $\text{SiO}_2$  [5, 6],  $\text{Al}_2\text{O}_3$  [7-10], polycarbonate (PC) [11, 12], mica [13] が報告され,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  では 10 keV  $\text{O}^-$  イオンを通過させた報告[14]と, 電子を通過させた実験[15, 16]もある. 図 4 にいくつかの実験で用いられたキャピラリーフォイルの顕微鏡写真を載せた [17]. また, シミュレーションによる研究も進んでいる [18, 19].

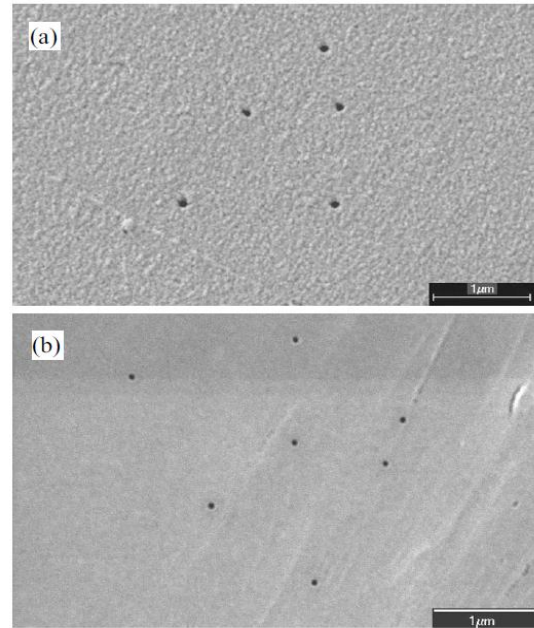


図 4: 絶縁体フォイルに作製されたマルチキャピラリーの SEM イメージ(右下のスケールは 1  $\mu\text{m}$ ) [17]:(a) 内径 100 nm で密度は  $4 \times 10^6/\text{cm}^2$ , PET 製 (b) 内径 60 nm で密度は  $10^7/\text{cm}^2$ , PC 製.

### 2.3 テーパー型ガラスキャピラリー

テーパー型ガラスキャピラリーに高速イオンビームを通過させる実験の成功があり, 一方, 絶縁体フォイルに設けられたマルチキャピラリーに低速多価イオンを通過させる実験もある. こうなれば, 低速多価イオンビームをテーパー型ガラスキャピラリーに通過させて低速イオンのマイクロビームを生成しようという考えが当然出てくる. そこで 2004 年に池田らは, 高速イオンのマイクロビームを成功させていた高知工科大学のグループと共同で, 低速多価イオンビームを通過させる実験を開始し, 2005 年になって 1 kV 加速の  $\text{Ar}^{8+}$  ビーム (8 keV) を, 出口径 24  $\mu\text{m}$  のテーパー型ガラスキャピラリーに通過させることに成功した [20, 21].

この時のガラス材はホウケイ酸塩ガラス (borosilicate glass) で, 図 5 にキャピラリーの全体およびビーム入口といくつかの出口近傍の写真を載せた. 図 6 は照射真空槽内 ( $4 \times 10^{-5}$  Pa) のセットアップで, 図 7 は 8 keV の  $\text{Ar}^{8+}$  ビームを入射したときのキャピラリー出射イオンのカウント数である. このプロットでは MCP の前に張ったメッシュ込の開口率 (約 50 %) を補正した値を表示している. 通過強度の立ち上がりに 50 秒くらい要してお



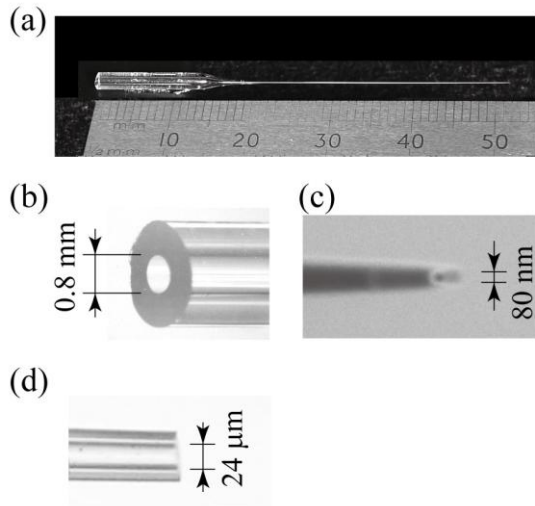


図 5: テーパー型ガラスキャピラリー:(a) キャピラリー全体図, (b) ビーム入口付近, (c) プーラーで作製した直後の先端の一例(この例では出口径は約 80 nm), (d) 文献 [20] の実験で用いられたビーム出口.

り( $t=0 \sim 50$  秒), この 50 秒間が自己組織化帯電分布の形成に費やされたと考えられる. 図 7 の inset はビーム入射開始時から約 40 秒間の拡大図である. 時刻  $t=6$  秒で最大になり,  $t=9$  秒で一度出射強度が下がる. 原因はまだ不明であるが出射直後のこの構造がかなりの確率で観測されている. 図 7 で入口には  $1.5 \times 10^5$  個/秒のイオンが入射され, 出射イオン数の最大値は 1,600 個/秒で, 出口(24  $\mu\text{m}$ )と入口(0.8 mm)の単位面積当たりの出射および入射イオン数を比較すると, 入射密度に対して出射密度は約 10 倍となり, 集束効果を有することが示された.

通過中のイオンがキャピラリー内壁近傍で前方散乱されるのであれば, キャピラリー入口を中心に本体を少しティルトさせてもビームは通過するはずである. 図 8 の inset に, キャピラリーを  $-5^\circ$  ( $= -87$  mrad) から  $+5^\circ$  まで  $1^\circ$  ステップでティルトさせた時の出射ビームの PSD 上でのプロファイルを示す. ティルト角に応じて左から右へスポットの移動が確認された. 図 8 のグラフの横軸がティルトさせた角度で, 縦軸は PSD 上でのスポット位置を回転角度に変換したものである.  $y=x$  の直線に沿っていることから, キャピラリー内壁近

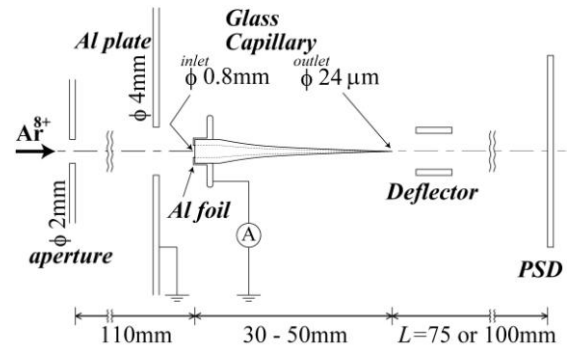


図 6: 実験のセットアップ[20]:出射イオンの計数は Position Sensitive Detector :PSD : Wedge and Stripe 型電極付 MCP で行った.

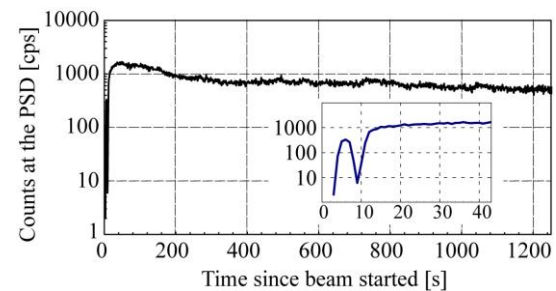


図 7: 8 keV の  $\text{Ar}^{8+}$  ビームを入射したときのキャピラリー出射イオンのカウント数の時間変化 [31] :通過強度の立ち上がりに 50 秒くらい要しており( $t=0 \sim 50$  秒), この 50 秒間が自己組織化帯電分布の形成に費やされたと考えられる. inset はビーム入射開始時から約 40 秒間の拡大図である.

傍での散乱によってビームが偏向され, キャピラリー軸の方向に出射していることがわかる. 一方, 出射ビームに横から電場をかけると異なる価数の Ar イオンを PSD 上で分離することができるが, 実際は入射時の価数(8 価)以外のスポットは見られず, ティルトさせなかった場合で, 出射イオンの 99 % 以上は荷電変換をしていなかった, すなわち, 内壁に触れることなく通過したといえる. ちなみに, 出射ビームの角度拡がりは  $\pm 0.3^\circ$  であった. 他の機関からは, 同じイオン種  $\text{Ar}^{8+}$  でエネルギーを 8 keV から 60 keV まで広げた実験 [22] や, 他のイオン種である  $\text{Xe}^{23+}$  [23,24],  $\text{I}^{q+}$  ( $q=10-50$ ) [25],  $\text{O}^{6+}$  [26] の報告もなされている.

また, 図 9 はガラスキャピラリーの形状をプロットしたもの[27]で, テーパー部分は内側に凸の形状を持っており, 市販のガラス電極作製機[28]を用いて作製されたものである. キャピラリー外径はもちろんのこと作製条件によっても形状は異な

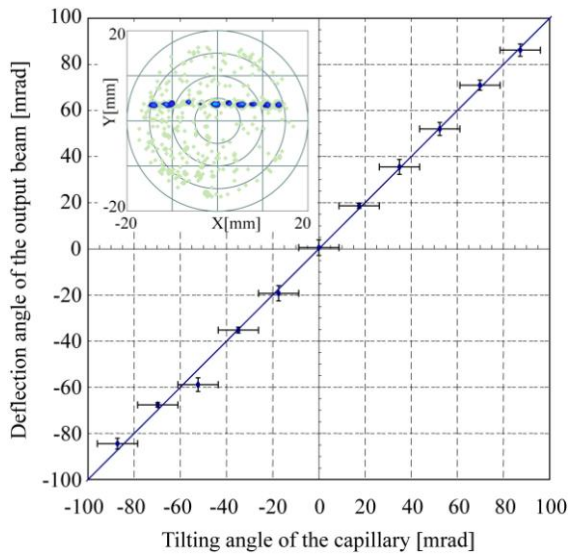


図8: ティルト角と出射方向の関係 [20]: 横軸はティルトさせた角度、縦軸は PSD 上でのスポット位置を回転角度に変換したものである.  $y = x$  の直線に沿っていることから、ビームが偏向され、キャピラリー軸の方向に出射していることがわかる. inset はキャピラリーを $-5^\circ (= -87 \text{ mrad})$  から $+5^\circ$ まで $1^\circ$ ステップでティルトさせた時の出射ビームの PSD 上でのプロファイルを示す.

り、内側に凸となっていない直線的なテーパーをもつキャピラリーも使用され始めている.

他にテーパー無しキャピラリーを使ってビームを通過させ、キャピラリーの温度をコントロールすることで通過量への影響を調べた報告[29,30]もある. この実験では $4.5 \text{ keV}$  の $\text{Ar}^{7+}$ を用い、キャピラリー(内径  $160 \mu\text{m}$ )の温度を $-25^\circ\text{C}$  から $+75^\circ\text{C}$  まで制御することで、ガラス(borosilicate glass)の電気伝導度、すなわち放電の速さを変化させ、キャピラリーによる偏向の度合いを測定した. その結果、温度が $-25^\circ\text{C}$  の時は、 $5^\circ$  程度ティルトさせても通過は確認できたが、温度の上昇とともに通過が確認できる最大ティルト角は小さくなっていき、 $+75^\circ\text{C}$  では電気伝導度は2~3桁上昇したと考えられ、ガイディングのための帯電が維持できなくなり、幾何学的な許容範囲(アスペクト比 $\sim 1^\circ$ )とほぼ変わらなくなった.

図10に見られるように、キャピラリーへの入射ビーム強度がほぼ一定でも出射されるビーム強度が不安定なことがある. この時の実験条件は、 $64 \text{ keV}$  の $\text{Ar}^{8+}$  およびキャピラリー出口径  $4 \mu\text{m}$  であった [31]. 前述の入射エネルギー $8 \text{ keV}$  より高いため通過効率も高く、約10倍の集束効果が

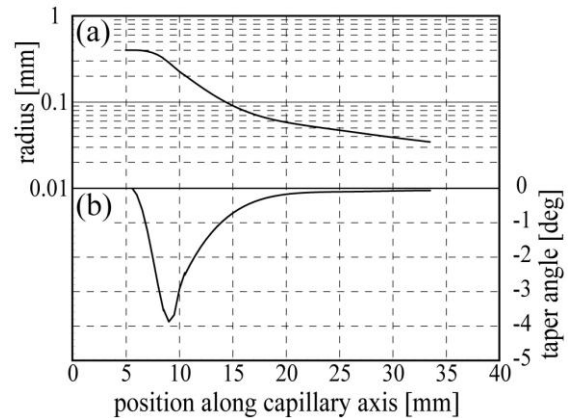


図9: キャピラリー形状 [27]: (a) 長さ方向の各位置での半径, (b) 半径の曲線を微分して求めた長さ方向の各位置でのテーパー角.

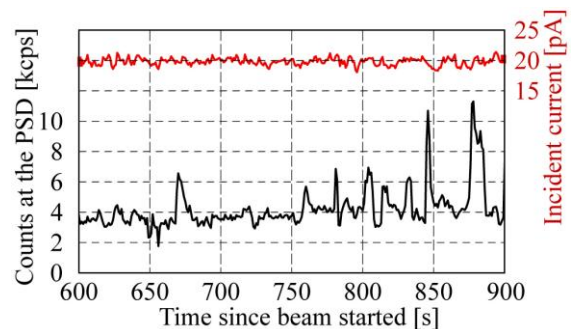


図10: 出口径  $4 \mu\text{m}$  のキャピラリーに  $64 \text{ keV}$  の $\text{Ar}^{8+}$  のビームを通過させたときの出射ビーム強度の時間変化 [31]: 赤実線が入射強度でほぼ一定であるにも関わらず、黒実線の出射強度は不安定で時折、バースト的に出射強度が高くなっている.

得られているが、時折、バースト的に出射強度が高くなっている. 入射強度が過多になっていると考えられるが、突然、出射強度が上がるということは、それまで通過を阻んでいた一部の帯電ポテンシャルが急に消失した、と考えることが自然である. ということは、ガラスの帯電は徐々に増減するだけでなく抵抗値が急激に減少することで突発的な放電が起こりうることになる. 従って、ガラスの帯電や放電に関する知識が必要になってくる.



## 2.4 ガラス材料の比較：何を基準にどのようなガラスを使えばよいか

マイクロビーム生成用のテーパ型ガラスキャピラリーの材質としては、主に、ホウケイ酸塩ガラス(borosilicate glass)や、ソーダ石灰ガラスが使われている。一方、マイクロビーム生成用ではなく生物実験で用いられるガラスキャピラリーでは、上記材質のほか、石英ガラスなども使われている。低速多価イオンビームのガイドイングではガラスの帯電が大きく貢献しており、その帯電の電圧や寿命などを考える場合、ガラスの電気伝導度や誘電率などの電気的特性に目を配らなければならない。電気伝導度が大きければ放電の際のリーク電流も大きくなり単位時間当たりの放電は多くなる。ところがリーク電流はローカルの電場にも比例しており、物質中のこの電場は誘電率に比例している。一方、ガラス表面への電荷の供給は、入射ビーム強度だけでなく、表面に衝突するイオン数を左右する帯電による電場の影響も受ける。よってここでも誘電率はこの電場を決定するという意味で、帯電にも影響を与えていることになる。従って、帯電や放電を考えるには、ガラスの電気伝導度と誘電率を思い描くことは大事であり、特に、実験データをシミュレーションで再現する場合はそれらの値を知ることが非常に重要であるが、文献は多くない。一方、ガラス細工をする上で現実的な加熱温度という制約や、一本のキャピラリーがあまりに高額にならないように市

販の材質から選ばなければならないということも念頭に置く必要がある。ここでは、ガラスの仕様表(表 1)を見ながら、電気伝導度や誘電率について考えていく。さらに、例えば前節のような実験をスタートさせたいという方々にも役立つようガラス表面に関する諸注意やそれぞれの種類のガラスが何を目的にどんな成分を含んでいるかという点についてもできる限り参考文献から引用してみた。

表 1 ではガラスの種類として 4 種類を抜粋して成分を比較しているが、成分比率は各メーカーによって異なる。一般にはガラス材の種類名が各社のコード番号や具体的な工業部品などの用途名に置き換わっていることが多い。

### 2.4.1 石英ガラス：高い軟化点が成形を困難に

「石英ガラス<sup>1)</sup>」は、熔融石英、熔融シリカ、シリカガラスなどとも呼ばれ、もちろん結晶ではない。一方、「石英」は SiO<sub>2</sub> が結晶化してできた鉱物であり両者は違うものである。石英の中でも特に無色透明なものを水晶(rock crystal)と呼ぶ。石英の粉末や水晶を加熱して融かし、できた融液を冷やして固めると、結晶ではなくなり、「石英ガラス」となる [32]。石英ガラスは化学的耐久性(耐水性、耐酸性、耐アルカリ性)、耐熱性、紫外線透過特性など多くの点で優れており、光ファイバーに用いられるなど特殊ガラスの一つとして広く用いら

表 1: 化学組成に基づくガラスの分類と各物理量 [32]. 成分や物理量は製造元により異なる。

種類	成分 [%]							
	SiO <sub>2</sub>	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	CaO	MgO	PbO	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
シリカガラス (石英ガラス)	99.5+	-	-	-	-	-	-	-
ソーダ石灰ガラス (窓ガラス)	71 ~ 73	12 ~ 15	-	8 ~ 10	1.5 ~ 3.5	-	-	0.5 ~ 1.5
鉛アルカリケイ酸塩ガラス (高鉛含有)	35	-	7.2	-	-	58	-	-
ホウ酸塩ガラス (低膨張)	80.5	3.8	0.4	-	-	-	12.9	2.2

	軟化点	線膨張率	比重	屈折率	体積抵抗率	誘電率
	°C	10 <sup>-7</sup> / °C	g / cm <sup>3</sup>	n <sub>d</sub>	log(Ω·cm) @ 250 °C	1 MHz @ 20 °C
シリカガラス (石英ガラス)	1667	5.5	2.20	1.458	12.5	3.78
ソーダ石灰ガラス (窓ガラス)	730	85	2.46	1.510	6.5	7.0
鉛アルカリケイ酸塩ガラス (高鉛含有)	580	91	4.28	1.639	11.8	9.1
ホウ酸塩ガラス (低膨張)	820	32	2.23	1.474	8.1	4.6

れている [32]. しかし, 高い軟化点(1,667 °C)を持ち, 成形には高温加熱が必要で, ガラス細工には不向きである. ここで軟化点という温度は, ガラスの種類間で「ガラスの変形流動が開始する温度 [33]」を比較するときに, 便利な指標で表 1 の鉛アルカリケイ酸塩ガラスではかなり低く 580 °C となっており低い温度でのガラス細工が可能である. ガラスでは融点が定義できないため粘性を比較に用い, ある粘度になる温度に名称を与えている. 軟化点は粘度が  $10^{7.5}$  dPa·s(デシパスカル秒 = P: Poise ポアズ)になる温度のことである. この粘度では, 「直径約 0.7 mm, 長さ 23 cm のガラス繊維が自重で毎分 1 mm 伸びる」とされている. 表にはあげていないが, 徐冷点( $10^{13.5}$  P), 歪点( $10^{14.5}$  P)が掲載されていることも多い. これらはガラスの内部歪を除去するためのアニーリング(焼鈍)スケジュールで参考にされる. 徐冷点(annealing point)はガラス中の歪を除く際の上限温度で, 15 分で内部歪がほぼ除去される. また歪点以下では粘性流動は事実上起こらないため, アニーリングスケジュールで冷却に入る際, 歪点までゆっくり冷やし, その後は急冷しても歪は入らない.

#### 2. 4. 2 ソーダ石灰ガラス : 低い軟化点と比較的高い電気伝導度が特長

実用ガラスのうち, 窓ガラスやびんガラス, 地球ガラスなど日常生活で見られるガラスの多くは廉価で大量生産に適するソーダ石灰ガラス(soda lime glass)である [32]. ソーダ石灰ガラスには 71 ~ 73 % の  $\text{SiO}_2$  と, 12 ~ 15 % の  $\text{Na}_2\text{O}$ , 8 ~ 10 % の  $\text{CaO}$  および少量の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が含まれている. このガラスを作る上での  $\text{Na}_2\text{O}$  の役割は, 非架橋酸素を生成することによって融液の粘度を下げ, 熔融を容易にすることにある. また  $\text{CaO}$  の役割は  $\text{Na}_2\text{O}$  の導入によって低下する化学的耐久性を改善することにある. 少量の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  は化学的耐久性を改善し, 液相線近傍で粘度を増してガラスの結晶化を抑制するためのものである.  $\text{MgO}$  も化学的耐久性および失透性を実用範囲に収め,  $\text{K}_2\text{O}$  は  $\text{Na}_2\text{O}$  との混合アルカリ効果により化学的耐久性を改善し, 電気抵抗を増大, 徐冷温度を低下させ表面張力を減少させる. そして液相温度を低下させ失透を抑制する働きも持つ [33]. 失透とは文字通り, 光を散乱して不透明になることであるが, ガラスを生成する際に温度分布が一様で

ないとガラス表面が局所的な加熱を受け, そのためにガラスの化学組成のうちアルカリ成分が蒸発してその部分に結晶が析出しその部分の透明度が下がることをいう [34]. また, ソーダ石灰ガラスには微量に  $\text{Fe}$  と  $\text{Cu}$  が不純物として含まれているため, 見る方向によっては少し青緑色に色がついて見える [35].

#### 2. 4. 3 ホウケイ酸塩ガラス : 理化学用として様々な形状の材料入手が容易

ホウケイ酸塩ガラス(Borosilicate glass)は, ソーダ石灰ガラスの  $\text{CaO}$  を  $\text{B}_2\text{O}_3$  で置き換えた構成になっており, 熱的性質や化学的性質に優れ, 理化学用や電気用ガラスとして広く用いられている. コーニング社のパイレックス: Pyrex® (Corning 7740)はホウケイ酸塩ガラスの一種で, 耐熱衝撃性<sup>2</sup>や耐酸性が高く, 耐熱食器などにも使われている.

#### 2. 4. 4 鉛アルカリケイ酸塩ガラス : 高い密度と高い屈折率が特長

鉛アルカリケイ酸塩ガラスは, ソーダ石灰ガラスの  $\text{Na}_2\text{O}$  の一部あるいは全部を  $\text{K}_2\text{O}$  に置き換え, さらに  $\text{CaO}$  を  $\text{PbO}$  に替えたもので, 高い屈折率と高い電気絶縁性を示す. 光学ガラスや美しい外観を持つクリスタルガラス<sup>3</sup>として, あるいは

<sup>2</sup> ソーダ石灰ガラスなどの  $\text{Na}^+$  を  $\text{K}^+$  に置き換えることで, 化学強化ガラスが作られている.  $\text{Na}^+$  を含むガラスを 380 °C 程度に加熱した硝酸カリの熔融塩に入れるとイオン交換が起こり表面近くの  $\text{Na}^+$  が  $\text{K}^+$  に置き換わる.  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$  のイオン半径はそれぞれ 0.133 nm, 0.095 nm で  $\text{K}^+$  のほうが大きいためガラスの表面層を広げようとする. しかし内部ではイオン交換が起こっていないため表面層だけに圧縮応力が生じる. ガラスは引っ張り応力によって破壊するため, 圧縮応力の分だけ余分に引っ張り応力をかけなければ破壊しないことになりガラスは強化される.

<sup>3</sup> ちなみに光学ガラスでもフリント(flint)は酸化鉛を含むが, クラウン(crown)は含まない. 鉛クリスタルガラスでは, 24 % 以上の酸化鉛を含むものをクリスタルガラスと一般に呼んでおり, それ以下をセミクリスタルガラスという. 鉛を含むといっても, 高温で熔融されており, 酸化鉛を多量に含いても, 耐化学性のよい組成にしておけば, 人体に影響するほどの鉛が溶出することはない. クリ

各種電子管や電灯の電極封入部など、電気絶縁性が要求される電気用ガラスとして用いられている。

#### 2. 4. 5 現実的材料はソーダ石灰ガラスおよびホウケイ酸塩ガラス

テーパー型ガラスキャピラリー [20,22-25]あるいはテーパー無しガラスキャピラリー [29,30]を使って低速多価イオンビームのガイディングを行っている研究グループはまだ少なく、表にあげた全てのガラス材でキャピラリーを作って比較実験がなされたわけではないが、成形のしやすさ(軟化点が高くない)、電気抵抗が高くない、という点ではソーダ石灰ガラスおよびホウケイ酸塩ガラスが選ばれる。しかしながら他の材質でも比較的安価なものが市販されているので、今後、比較実験を試みる価値はある。シミュレーションでは抵抗値や比誘電率を盛り込んだ研究が既に始まっている [36]。

#### 2. 4. 6 体積抵抗率、電気伝導度、そしてバンドギャップ

表 1 の体積抵抗率は帯電の寿命や放電の大きさにかかわってくる。体積抵抗率  $\rho$  [ $\Omega \cdot \text{cm}$ ] は抵抗値  $R$ 、長さ  $l$ 、断面積  $S$  を使って;

$$R = \rho \frac{l}{S}$$

で与えられ、値の幅はあるが半導体と比べ 10 桁ほど大きい。このような大きな抵抗値はバンドギャップを使っても説明される。半導体である純粋な Si のバンドギャップは 1.12 eV で、その他、GaAs は 1.43 eV、InP で 1.34 eV、GaP では 2.27 eV となっている。ここで抵抗  $R$  ではなくその逆数のコンダクタンス  $S_c$  (単位はジーメンズ:S)、体積抵抗率ではなく電気伝導度  $\sigma$  ( $\sigma=1/\rho$  の関係になり  $\sigma$  の単位は S/cm) で考えると、 $\sigma = q n \mu$  (荷電粒子の電荷  $q$ 、電子密度  $n$ 、移動度  $\mu$ ) なので、バンドギャップ 1.12 eV を例に、 $n = 1.45 \times 10^{10}/\text{cm}^3$ 、 $\mu$

スタルガラスと言っても酸化鉛ではなく酸化カリウムを使ったカリクリスタルもあり、これはボヘミアン・クリスタルとして有名である。16 世紀、ボヘミアのガラス製造で使っていた輸入ソーダが滞ったため、替わりのアルカリ原料(カリ源)として木炭を使ったことによると言われており、当時ドイツ付近では、木材を燃やすために森から森へガラス工場が移動したという [34]。

$= 1500 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  を代入すると  $\sigma = 4.4 \times 10^{-6} \text{ S/cm}$  となる。ちなみに金属の銅では  $\sigma = 6.0 \times 10^5 \text{ S/cm}$  である。では、ガラスのバンドギャップはどれくらいかとなると、まずは、多くのガラスが透明であるということからバンドギャップとしては 3.1 eV(可視光最短波長 400 nm として)以上であるという予想はつく。極端な例をあげると SiO<sub>2</sub> のみからなる石英ガラスのバンドギャップは 8 ~ 9 eV とされており、9 eV とすると電子密度  $n = 10^{-53}/\text{cm}^3$  しかない、すなわち、1辺が  $10^{13} \text{ km}$ (海王星の公転半径でも約  $4.5 \times 10^9 \text{ km}$ ) の立方体のガラスの塊の中にやっと電子が一つだけ動ける状態であるかもしれないというくらい電子が少ない。この電子密度はガラスのバンドギャップの中には本当に電子がいられる状態が何もないという、非常に単純で理想化された計算によるもので、実際の物質中には、動ける電子の数はずっと多くなるが、半導体 Si の電子密度に比べると桁違いに小さい [35]。また、仮に移動度が半導体 Si と同程度だったとしても電気伝導度は Si のそれに比べ桁違いに小さくなるのが容易に想像できる。ソーダ石灰ガラスのバンドギャップを見てみると 3.5~6 eV となっており、製造元や製造法の違いによって値に幅があるものの、例えばバンドギャップが 3.3 eV だとすると電子密度  $n = 10^{-5}/\text{cm}^3$  程度でやはり半導体 Si に比べれば少ない値である。

#### 2. 4. 7 電気伝導度のスイッチング現象

このようなガラスの小さい電気伝導度を上げる工夫は透明金属を作る工夫として精力的に行われている [35]。一方、外部からの電場や光によって電気伝導度(抵抗値)が変化する現象もガラスにおいて確認されている。例えばカルコゲンガラスのスイッチング特性がそれである。カルコゲンガラスとは、表 1 にあげたようなガラス(酸化物ガラス)の酸素の部分に硫黄(S)、セレン(Se)、テルル(Te)といったカルコゲン元素で置き換えたガラスである。もっとも古い例では 1968 年米国のベンチャー企業 ECD 社の社長 Ovshinsky による「電圧しきい値スイッチ」および「メモリースイッチ」である [37, 38]。電流-電圧特性を考えた時に、しきい値スイッチとは、絶縁体状態で電圧を印加していき、電圧がしきい値を超えると絶縁体としての抵抗値が大きく下がり電流が流れるようになるが、電圧を十分に下げると元の絶縁状態に戻るというものである。一方メモリースイッチでは、電

圧がしきい値を超えて抵抗値が下がった後、電圧をゼロまで下げても導通状態が保存されている現象をいう。電圧印加ではなく、光照射でも同様の現象が知られ、光を照射しないときは抵抗値が非常に高く、照射中は抵抗値が下がり電流がよく流れる(光伝導) [39]。抵抗値は温度上昇とともに滑らかに小さくなり、金属の抵抗値とは逆の振る舞いを示す。イオンや光を照射すると、照射による温度上昇が原因で抵抗値が下がる効果もあり得るが、急激に(スイッチング的に)抵抗値が下がったり上がったりする場合は、温度変化の追従の速度を考えると何か別プロセスを導入しないと、この急激な抵抗値変化を説明できない。詳細は次節で述べる。

#### 2.4.8 一定ではない誘電率

表中の誘電率(dielectric constant)は比誘電率  $\epsilon_r$  で表されており誘電率  $\epsilon = \epsilon_r \cdot \epsilon_0$ 、ただし、 $\epsilon_0$  は真空の誘電率で  $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$  F/m である。誘電体と聞くと物理の入試問題でコンデンサの電気容量に関する話を思い出す。ガラスキャピラリーの外側がアース電位で、内側に入射イオンビームが衝突することで電荷が付与されると、ガラス内部に誘起される電場は、真空の場合に比べて  $\epsilon_r$  倍大きくなると考えられる。この比誘電率は周波数の関数になっている。真空中では、電束密度  $\mathbf{D}$  と電場  $\mathbf{E}$  の関係は、 $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E}$  であるが、物質中、分極が起こっている場合、分極ベクトル  $\mathbf{P}$  を使って  $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ 、と書ける。分極ベクトル  $\mathbf{P}$  を電気感受率  $\chi$  を使って表すと  $\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E}$  となる。つまり、物質中で  $\mathbf{D} = \epsilon_0 (1 + \chi) \mathbf{E} = \epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E}$  と表すと、比誘電率  $\epsilon_r$  は物質の分極に対応しており、電場の周波数にどれくらい追従できるかを反映した物理量であることが分かる。絶縁体を電界の中に置くと分極現象がみられるため誘電体ともいう。誘電体が外部電界により分極する現象は、主に次の4種類(1) 電子分極、(2) イオン分極、(3) 配向分極、および(4) 界面分極、に分類される。低い周波数では4種類の分極の全てで荷電体の移動が電界の時間変化に追従できるが、周波数が高くなってくると、界面分極、配向電極、イオン分極の順番に追従できなくなってくる。配向分極はマイクロ波領域の周波数で急激に減少し、その周波数近傍で大きな誘電吸収を起こすことになる。それ以上の高い周波数では、イオン分極と電子分極のみが起こる。同様な落ち込みお

よび吸収はイオン分極では赤外線領域、電子分極では紫外線領域で起こる。交流電場中では誘電率は複素数  $\epsilon^* = \epsilon' - i \epsilon''$  ( $\epsilon_r^* = \epsilon^*/\epsilon_0 = \epsilon_r' - i \epsilon_r''$ )で扱われるが、実部  $\epsilon'$  は、分極に比例する量で、虚部  $\epsilon''$  は誘電損率といい、誘電体内部での熱損失(誘電吸収)に比例する量である。また、 $\tan \delta = \epsilon_r'' / \epsilon_r'$  を誘電正接、 $\delta$  を誘電損角といい、たいていのガラス材の仕様には掲載されている<sup>4</sup>。ガラスキャピラリーにおいてガラス帯電の電圧や電場を考える場合、誘電率が重要になることは既に述べたが、仕様に掲載された誘電率は多くの場合、1 MHz での値である。前述の各分極の上限周波数は、配向分極( $\sim 10^{10}$  Hz)、イオン分極( $10^{14}$  Hz)および電子分極( $10^{17}$  Hz)であるので、1 MHz といのは十分低い周波数なのだが、ガラスキャピラリーなどで利用している帯電はもっと遅い現象と考えられるので、仕様に掲載された1 MHz での誘電率よりは大きい値ではないかと考えられる。もっとも、誘電率は温度によっても変化するので、ビーム照射時のガラス材の誘電率の値を推測することは更に難しい。

#### 2.4.9 滑らかでデリケートなガラス表面

表には出ていないが、耐水性についても、ガラス材の保存法の観点から注意しておくべきである。ソーダ石灰ガラスでは、 $\text{Na}^+$ イオンは拡散によって表面に出てくる。表面に大気中の水分が吸着している場合、 $\text{Na}^+$ イオンは大きな4水和物を形成してガラス中に戻ることができなくなり、代わりに  $\text{H}^+$ イオンがガラス内部に入ってくる(イオン交換)。また、同様に  $\text{Ca}^{2+}$ も  $\text{H}^+$ と置き換わることから、表面にはNaとCaの欠損した表面層ができる。この層は屈折率が小さく干渉色が表れ「青ヤケ」と言われる現象で、このような表面層の変化は外部雰囲気中に5分程度の短時間さらしただけで生じる [33, 40]。さらに、NaやCaは雰囲気中の水分子と反応して水酸化物に変化し、空気中の  $\text{CO}_2$  とも反応して炭酸塩となる。炭酸カルシウムが生成される段階ではガラス表面はアルカリによって溶解され<sup>5</sup>ているため、表面は凸凹になりケ

<sup>4</sup> ちなみに、配向分極の誘電吸収ピークはマイクロ波領域なので、この周波数における加熱をマイクロ波加熱といい、電子レンジなどでは 2.45 GHz の周波数を利用している。

<sup>5</sup> フッ酸を除く酸には強いが、pH が 9 以上のアルカリには溶解する。

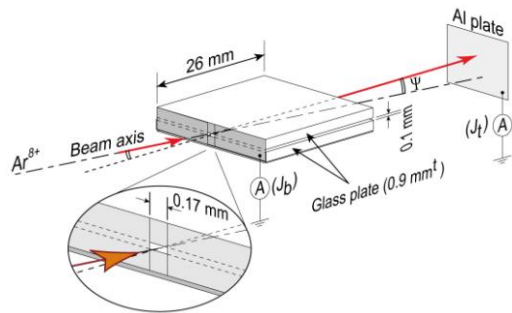


図 11: 2 枚ガラス板間によるビームガイド実験のセットアップ [41]: 入射ビームは 13 kV 加速の  $\text{Ar}^{8+}$  で、ガラス板ペアは下流側がビーム軸に対して  $\psi = 7 \text{ mrad}$  だけ跳ね上げてあり、帯電によるガイド効果が起こった時だけ下流で通過ビーム強度が測定される。ここで  $J_t$  は通過ビーム強度、入射ビーム強度は  $J_i$  で  $J_i = J_b + J_t$  が成り立つ。

イ酸水和物(シリカゲル)の脱水物も現れ、拭いてもとれない白いくもり「白ヤケ」となる。すなわち、ガラスの表面状態や透明度を維持するためには湿気が大敵ということである。ガラス材は乾燥雰囲気中で保存するよう、気を配っておくべきである。また、成形した直後のガラス材の表面粗さは非常に小さく、大きくとも  $\mu\text{m}$  以下の滑らかさであり、金属材料では簡単には到達できないほどである。これはガラス材を用いる大きなメリットの一つでもある。それゆえ、キズやほこり等にも十分気を付けなければならない。

## 2.5 2 枚ガラス板間によるビームガイド

前節でガラスの電気抵抗値のスイッチング現象について触れたが、その現象をモデル化し、実験結果を説明する試みも登場した。ここでは、ガラスキャピラリーのような円筒や円錐形の輸送路ではなく、平面にはさまれた隙間にビームを通す実験[41]を紹介する。図 11 はセットアップでガラス板は顕微鏡観察で使うスライドガラスを用いており、材質はソーダ石灰ガラスである。入射は 13 kV 加速の  $\text{Ar}^{8+}$  ビーム(104 keV)で、このガラス板ペアは下流側がビーム軸に対して 7 mrad だけ跳ね上げてあり、帯電によるガイド効果が起こった時だけ下流で通過ビームが観測される。入射したビームは下側のガラス板に衝突(被照射領域)するような幾何学的位置になっている。下側ガラス板の裏面(外側)はアース電位になっているため、隙間内の被照射領域に誘起される電圧および電場が定義できる。図 12 は入射ビーム強度と通過ビーム強度の時間経過で、入射強度は赤実線で表されている。測定中約 15,000 秒間で 10 回程度入射ビーム強度を変化させており、前半は徐々に上げて行き、後半は徐々に下げていったが、それ以外の時は、入射強度は一定に保たれている。一方、通過ビーム強度(青実線)は、時刻  $t = 1,500$  秒付近でスパイク的な通過が起こり、それ以前ではかなり不安定な通過だったものが、このスパイクを境に徐々に規則正しい振動的通過に変わった。また、入射強度とともに通過強度

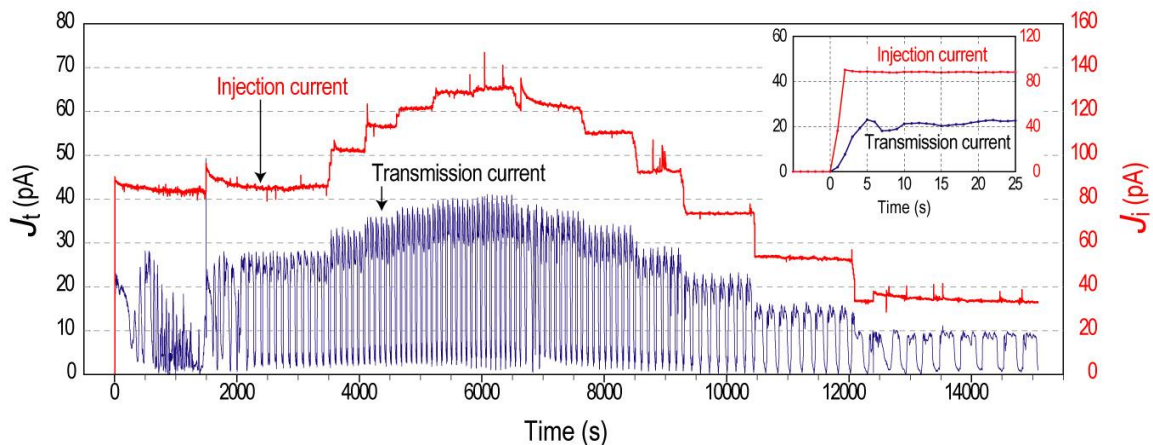


図 12: 入射ビーム強度  $J_i$  の設定値と対応する通過ビーム強度  $J_t$  の時間変化 [41]: 通過ビーム強度(青実線)は、時刻  $t = 1,500$  秒付近でスパイク的な通過を示し、それ以前ではかなり不安定な通過だったものが、このスパイクを境に徐々に規則正しい振動的通過に変わった。



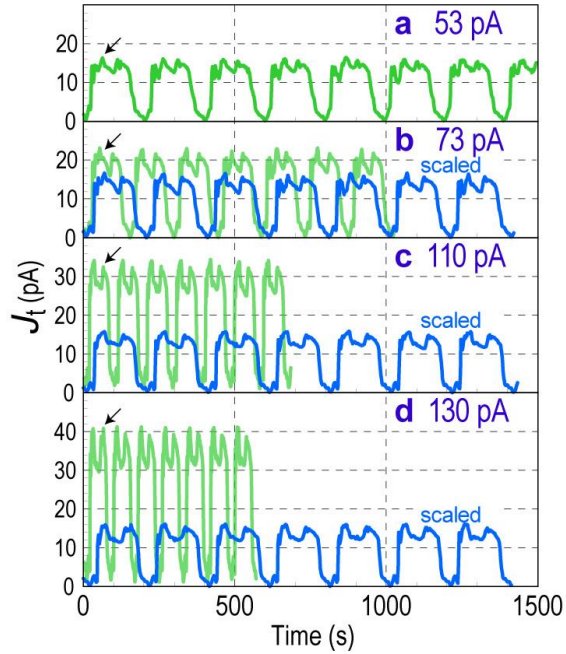


図 13: 各入射ビーム強度 ( $J_i = 53 \text{ pA} \sim 130 \text{ pA}$ ) のときの振動的通過ビーム強度 [41]: パネル a は入射  $53 \text{ pA}$  のときの通過強度の変化である(緑実線). 例えば, パネル c の緑実線は入射  $110 \text{ pA}$  の時の強度変化であるが, a ( $53 \text{ pA}$ ) に対して c ( $110 \text{ pA}$ ) は約 2.1 倍なので緑実線を縦に 2.1 分の 1, 横に 2.1 倍にスケールすると青実線のパターンが得られ, パネル a の緑実線と細かい構造を含めほとんど同じ周期になる.

の振幅も大きくなっていることが分かる. さらに振動の周波数  $\nu_{\text{osc}}$  (ミリ Hz のオーダー) も入射強度とともに大きくなっているように見える. 図 13 は周波数の入射強度に対する線形性を確かめたプロットで, パネル a は入射  $53 \text{ pA}$  のときの通過強度の変化である(緑実線). 一方, 例えば, パネル c の緑実線は入射  $110 \text{ pA}$  の時の強度変化であるが, a ( $53 \text{ pA}$ ) に対して c ( $110 \text{ pA}$ ) は約 2.1 倍なので c の緑実線を縦に 2.1 分の 1, 横に 2.1 倍にスケールすると青実線のパターンが得られ, パネル a の緑実線とほとんど同じ周期になることがわかる. さらに興味深いことに細かい構造までよく一致している. 図 14 の○印は振動的通過の周波数と入射強度の関係を示したものでほぼ一直線上に並んでいる. 通過していたビームが減ってしまうということはガイド効果に必要なガラス表面の帯電が失われてしまったということであり, 周波数と入射強度がほぼ比例しているということは, ある一定量の電荷が貯まったらその電場によりガラスの抵抗値が急に下がって, ガイド効果を

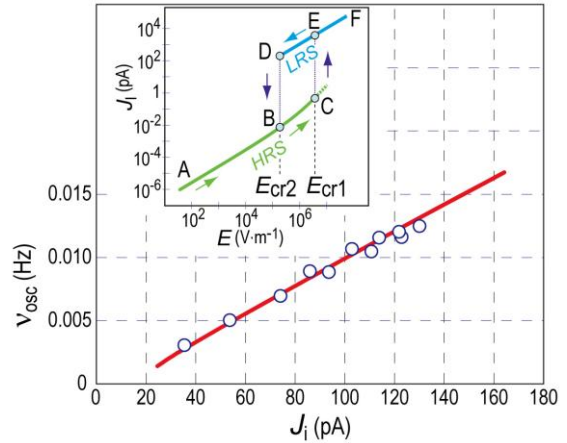


図 14: 振動的通過の周波数  $\nu_{\text{osc}}$  と入射ビーム強度  $J_i$  の関係 [41]: ○印はほぼ一直線上に並んでいる. 赤実線はシミュレーションにより再現された関係である. inset はシミュレーションで用いられたヒステリシスを持つ resistive switching モデルを表したもので, HRS: high-resistance state と LRS: low-resistance state の間をスイッチングすることで急激な抵抗値変化が現れる.

支えていた電荷が放電により減ってしまったというモデルが成り立つ. (ガイド効果が起こっていても, 入射電流の一部はガラス表面に電荷を与え続けている.) 図 14 の inset はヒステリシスを持つ resistive switching モデルを表したもので, ビームが入射され始めた時点は A に対応し, 入射が続くとガラス板表面の電場が高くなっていく, それに伴いガイド効果によりガラス板表面に触れることなく通過していくイオンも増えるが, 通過できずに表面の帯電に寄与し続ける割合もある. この A から C に向かって進むパスを絶縁体フェーズ (HRS: high-resistance state) と呼び, 電場が C になった時に LRS: low-resistance state にスイッチする. スwitchして上のパスに行くと放電が一気に進むが, E から C に逆戻りするのではなく, しばらく LRS に留まり D に着いてから, B に降りるといったヒステリシスを持つループを描く. このモデルはカルコゲンガラスなどメモリー素子を仮定して合成された物質では確認されているが, この実験のような市販のガラス板ではまだ報告されていない. しかしながらモデルに基づいたシミュレーションの中で,  $E_{\text{cr1}} = 4 \times 10^6 \text{ V/m}$ ,  $E_{\text{cr2}} = 2 \times 10^5 \text{ V/m}$ ,  $\epsilon_r = 13$  など教科書的な文献に掲載されている値でもこの振動周波数と入射強度の関係を図 14 の赤実線のとおり再現することができた. また入射

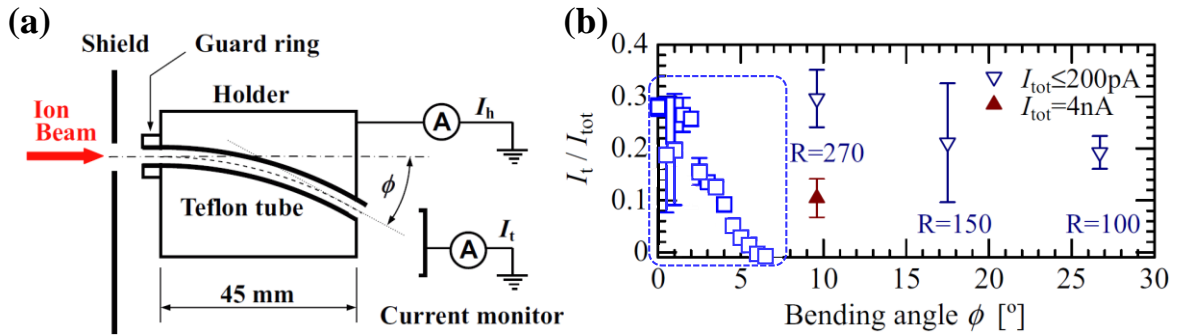


図 15: (a) セットアップ [42]:ビームは 8 keV の  $\text{Ar}^{8+}$ を用い、アルミ製のホルダーに偏向角が  $0^\circ$ ,  $9.6^\circ$ ,  $17.5^\circ$  および  $26.7^\circ$ になるような溝を並べて設け、そのなかにそれぞれテフロン管を埋め込んだ構造になっている。(ここではひとつのテフロン管だけ示してある。)入射ビーム強度  $I_{\text{tot}}$ は、通過ビーム強度  $I_t$ と、ホルダーに流れた電流  $I_h$ の和で求められている。(b) 通過効率.  $R$  はカーブの度合いを曲率半径で表したもので、 $9.6^\circ$ ,  $17.5^\circ$ および  $26.7^\circ$ はそれぞれ  $R = 270$  mm,  $150$  mm および  $100$  mm となっている [42].

ビームが弱すぎると C にたどり着けないし、強すぎると E から F に向かってしまいガイドに必要な電荷を貯めることができない。シミュレーションでは、入射強度が 25 pA から 165 pA くらいまでの範囲でしか起こらないことを示している。この resistive switching の研究は、既にいくつかのメーカーで抵抗変化型メモリー (ReRAM: resistance random access memory) 素子の開発として進んでいる。

## 2.6 絶縁体曲がり管によるビームガイド

絶縁体ビーム光学を使って低速多価イオンビームを偏向させることができるようになったが、既存の電磁石による偏向に比べると、まだ偏向角は大きくない。それならば、絶縁体細管のティルトを連続的につなげればより大きな偏向角が実現できるはずである。ここでは、ある程度の柔軟性をもつ樹脂の細管にカーブを持たせ、最大  $26.7^\circ$  の偏向を示した実験[42]を紹介する。図 15(a) は実験セットアップでビームは 8 keV の  $\text{Ar}^{8+}$ を用い、アルミ製のホルダーに偏向角が  $0^\circ$ ,  $9.6^\circ$ ,  $17.5^\circ$  および  $26.7^\circ$  になるような溝を並べて設け、その溝にそれぞれテフロン管を埋め込んだ構造になっている。(図(a) ではひとつのテフロン管だけ示してある。)入射電流は、通過した電流と、ホルダーに流れた電流の和で求められている。図 15 (b)の縦軸は通過効率を表し、青点線で囲まれたデータはカーブが  $0^\circ$  すなわちカーブの無い管のティルトによるもので前述のテーパ型ガラスキャピラリーでのガイド効果と同

様、最大  $5^\circ$  くらいがガイド効果の限界であった。しかしながら、ティルトではなくカーブを付けた管では、入射電流強度が 4 nA では  $9.6^\circ$  (曲率半径  $R = 270$  mm)の偏向に成功し、もっと小さい 200 pA 以下では  $26.7^\circ$  ( $R = 100$  mm)に達した。この柔軟性を持った樹脂管を用いれば、電磁石を使わずにある程度自在に偏向でき、物体の内部に低速多価イオンビームを照射できるなどの可能性が開かれたことになる。

## 3. 高速イオンビーム

この章では、高速イオンビームについて、前半に通過特性に関する研究を見ていき、後半にはマイクロビームとしての応用を紹介する。

### 3.1 ガラス管内壁での小角散乱(輸送過程に関する研究)

ここでは、冒頭に紹介した 2 MeV の  $\text{He}^+$  イオンビームをテーパ型ガラスキャピラリーに通過させマイクロビームを生成した最初の実験[2]を紹介する。使用したガラスキャピラリーはホウケイ酸塩ガラス製で入口径および出口径がそれぞれ 0.8 mm,  $0.8 \mu\text{m}$ , 長さが約 5 cm, その下流に半導体検出器(Surface Barrier Detector: SBD)をマウントし、出射イオンのエネルギーを SBD を使って真空容器内で測定した。その結果、キャピラリーがビーム軸と平行な場合は、出射したイオンのほとんどは 2 MeV の運動エネルギーを保持したままであった。しかしながらキャピラリーを  $2^\circ$  ティルトした場合は、通過はほとんど見られず、わずかに通過してきたイオンのエネルギーは 0 から 2

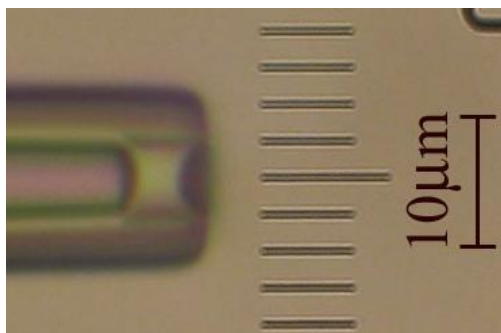


図 16: プラスチックシンチレータ製のフタが取り付けられたテーパ型ガラスキャピラリー。

MeV 未満に分布していた。また、入射後ほぼ同時に射出ビームが得られることから、MeV エネルギーのイオンビームは内壁の自己組織化帯電分布による散乱よりは主に小角散乱によって通過していると考えられる。ビーム輸送過程については、長谷川ら[43]による真空中での通過特性および射出ビームプロファイル等を扱った報告が詳しい。彼らは 2 MeV の  $H^+$  を用い、キャピラリーの出口径は 20  $\mu\text{m}$  で、射出ビームのプロファイルを見るためのイメージングプレートおよび射出イオンのエネルギーを得るための検出器も備えた。実験ではテーパ角による射出ビームプロファイルの違いを示し、ビームプロファイルには中心部分(core part)、および周辺部分(halo part)が存在することも示した。さらに射出ビームのうち、core part よりも halo part のほうが、エネルギー損失が著しいことも示した。この結果は同時に行ったシミュレーションでもよく再現された。シミュレーションでは、この条件でのテーパ型ガラスキャピラリーの集束効果(ビーム内の粒子密度のゲイン)は 1.6~1.7 倍であるとしている。このエネルギー領域での集束効果のゲインは、入射ビームの拡がり、エネルギー、キャピラリー形状、キャピラリー出口径およびマイクロビームとして使用する際のエネルギー拡がりをどこまで許容するかによって、変わってくるが、個別の実験でゲインを評価するには、長谷川らのこの手法が参考になる。

ここまでは真空中での通過ビームの測定であったが、藤田らのグループは、真空槽には入れられない文化財等をサンプルとし、マイクロビームによる微細領域の PIXE 分析法の開発を行った [44]。この場合、サンプルは大気中にあるのでキャピラリーから射出されたビームは空気を通った後サンプル表面に到達する。キャピラリー本

体内部はビームダクトと直結しており、真空である必要があるが、キャピラリー出口は多くの場合 100  $\mu\text{m}$  オーダーあるいはそれ以下であるので、十分な排気が行われていれば、空気がキャピラリー内に浸入しても MeV エネルギーの  $H^+$  であればある程度高い運動エネルギーを保ったままサンプルに到達できる。彼らはキャピラリー入口付近から出口へ向かう部分、つまりイオンにとっては徐々に空気の密度が高くなっていく状況でのエネルギー損失の度合いを見積もり、サンプル到達時点での射出ビームのエネルギー拡がりはかなり小さいことを見出し、キャピラリーを使った大気マイクロ PIXE が可能であることを定量的に示した。また、2 次元マッピング PIXE[45]や  $H^+$  と  $He^{2+}$  とで通過特性の比較も行った [46]。一方、土田らのグループは、0.24 - 0.96 MeV/atom  $C_2^+$ 、0.24 MeV/atom  $C_3^+$  および 0.24 MeV/atom  $C_4^+$  をテーパ型ガラスキャピラリーに通過させて、射出ビームのフラグメント化についての議論を行い [47]、また、クラスタービームへの適用として  $C_{60}$  ビームをマイクロビーム化する試み[48]も報告している。

### 3.2 マイクロビーム応用

冒頭でも少しふれたように、高速イオンは水中での飛程が数  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  程度に達するため、標的が数 10  $\mu\text{m}$  程度の大きさで、密度があまり高くない時は、ビームエネルギーを調整することで、ビームを貫通させたり、あるいはビームを標的内で停止させブラッグピークに対応する大きなエネルギー付与を実現させたりできる。大気中ではキャピラリー出口から空気が流入しても、問題にならない使用方法があるが、液体が流入するとビームが通過できないばかりか、加速器にまでダメージが及ぶ場合がある。そのため、液体中に標的がある場合は、図 16 のような出口にプラスチック製(またはガラス製)フタを設けたキャピラリーが使用される。液体中の標的へのマイクロビーム照射は、以前から、培養液中の生きた細胞への照射として行われてきた。多くの場合、もっと高い加速エネルギーが使われ、例えば培養皿の上方からよく絞られたビームまたはシングルイオンがビームダクト最下流の真空隔壁を通過し、大気層、培養液を通過して標的の細胞を通過する。標的通過後にイオン検出器を置けば、イオンの計数も可能である。しかし、本章で扱うマイクロビー



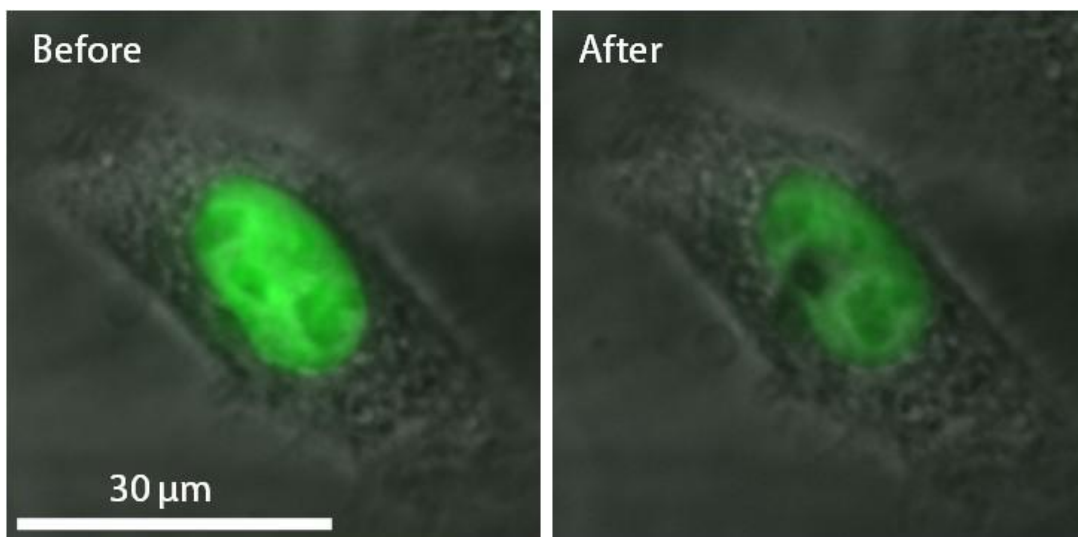


図 17: マイクロビーム照射された前後の HeLa 細胞の核(緑色の部分): 照射後は核の一部分が丸く退色しており、その領域の径はほぼキャピラリーの出口の大きさに等しい。なお、照射後の緑色が全体的に暗くなっているのは励起光を照射し続けたことによるものである。

ムはキャピラリー出口を培養液中の細胞にぎりぎり触れるくらいまで近づけることができるため、標的に至るまでの物質での散乱がほとんどなくビームサイズが大きくなることが防げる。また、ブラッグピーク位置の深さを設定すればその位置より深い部分のダメージを減らすことも可能である [49]。ただし標的通過後のイオン計数ができないため、現在、フタをプラスチックシンチレーター等の蛍光物質に置き換えて標的の直前でイオン計数する方法を開発中である [50]。シングルイオン照射を行う場合はイオン計数が必要になるが、複数個のイオンを照射する場合、ビームをパルス化し 1 パルス内のイオン数を照射前に設定することでサンプルへの照射線量をコントロールする方法でも多くの実験に対応できる [51]。この場合、照射イオン数はポアソン分布に従うことになる。図 17 はフタの付いたキャピラリーを使用して 1 MeV の  $H^+$  を出射させたときの細胞照射前および照射後の顕微鏡写真である。標的は HeLa 細胞と呼ばれるヒト子宮頸ガンの細胞で、励起光下で細胞核領域から蛍光を出すように蛍光タンパク質 (green fluorescent protein: GFP) を自ら生成するよう作製されている。この GFP の蛍光機能はビーム照射に対してはかなり堅固であるため、機能を喪失させるには照射量はかなり必要で粒子数にして  $\sim 10 \text{ pA} \times 20 \text{ 秒間}$ 、すなわち約  $10^9$  個であった。キャピラリーのフタの直径すなわち出口径

は  $5 \mu\text{m}$  で、フタはガラス製で  $8 \mu\text{m}$  の厚さであった。照射後の細胞核を見ると、左側の一部分が丸く退色していることがわかる。その退色域の径はほぼキャピラリーの出口の大きさに等しい。なお、照射後の緑色が全体的に暗くなっているのは励起光を照射し続けたことによるものである。同様の方法で大腸菌への照射を行い、べん毛の付け根にある分子モーターの放射線耐性および分裂と伸長への影響について調べた実験 [52] も行われた。この実験では大腸菌の長さは  $2 \mu\text{m}$  ほどで、適切な密度で大腸菌をまくと、顕微鏡の一つの視野内で標的と非標的(生物分野ではコントロールと呼ぶ)が同時に観察でき、照射以外の条件は等しくそろえることができる。図 18 のような写真をムービーで取り込み、運動や分裂の様子を後から詳細に分析することができる。

さらに生物標的ではなく、溶液中の材料表面への照射にも使われ始めている。例えば、アクリル酸溶液 (aqueous acrylic acid (AAc,  $\text{CH}_2\text{CHCO}_2\text{H}$ ), 0-10 wt.% ) 中に標的として polyethylene (PE,  $-\text{[CH}_2\text{CH}_2\text{]}_n-$ ) および polytetrafluoroethylene (PTFE,  $-\text{[CF}_2\text{CF}_2\text{]}_n-$ ) のシートを入れ、キャピラリーからの  $3 \text{ MeV}$  の  $H^+$  を照射(スキャン)した [53]。その結果、照射領域に沿って大きな親水性が確認された。これはアクリル溶液がビームにより活性を得た結果、サンプル

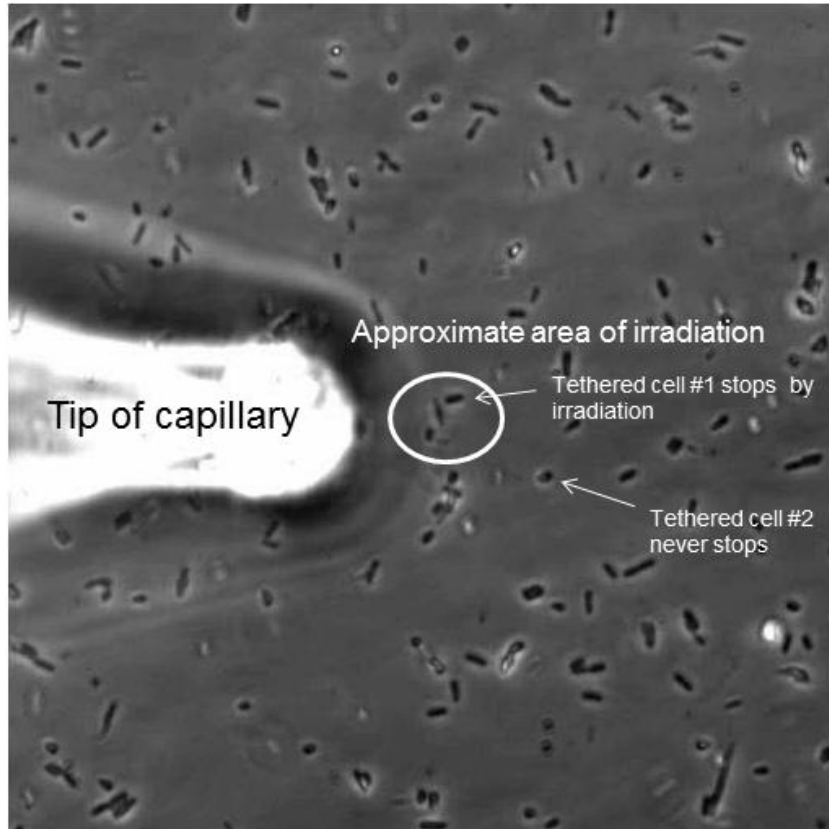


図 18: 顕微鏡視野内の特定の大腸菌へのマイクロビーム照射 [52]: 倒立顕微鏡を使っており斜め 45° 上から伸びたキャピラリーの先端は顕微鏡焦点からやや離れているためぼやけて見える。Tethered cell #1 が標的大腸菌で Tethered cell #2 がコントロールである。どちらの大腸菌 のべん毛もガラス基板に張り付いており大腸菌本体がべん毛分子モーターにより回転運動する。大腸菌 #1 はビーム照射されているため、次第に回転が遅くなりついには回転が止まったが、ビームはよく絞られているため、#2 にはビームが当たっていないと考えられ、照射中も同じ速度で常に回転していた。

ル表面の改質に寄与したと考えられ、新しい表面改質の手法として興味深い。

一方、フタを付けないキャピラリーも応用研究で使用されており、前述の藤田らの大気中マイクロ PIXE や、大気中の Scanning Transmission Ion Microscopy (STIM) [54]がある。真空中では液滴ジェットへの照射 [55]や、nuclear reaction analysis (NRA)のための 6 MeV,  $^{15}\text{N}^{2+}$ ビームを通過させた例[56]がある。このエネルギーでのテーパー型ガラスキャピラリーによるマイクロビーム生成は日本国内の研究が海外に比べかなり進んでいるが、中国[57]、スイス[54]、ルーマニア[58]、ベラルーシ[59,60]からの報告も出てきた。

#### 4 イオン以外のビームへの試み

前節の小角散乱によるビーム輸送をヒントにミュオンビーム(54 MeV/c)の集束実験が行われた。

ミュオンはレプトンの一種で 2.2  $\mu\text{s}$  の寿命を持ち、崩壊して電子または陽電子を放出する。このとき、親粒子であるミュオンのスピンの向きに依存した方向に放出される確率が大きいので、例えばスピンの向きがそろったミュオン(偏極ミュオンビーム)をパルス的に大量に試料に打ち込み、電子あるいは陽電子の放出される方向を時間依存で記録すれば、物質内でスピンの向きが内部磁場によってどれくらい向きが変わっていくかの情報が得られる。従ってミュオンビームは物性研究のツールとしての大きな役割も担っている。最近の傾向として新しく合成されたわずかな量の試料を標的とすることが多く、ミュオンビームを絞って密度を上げれば限られたビームタイムの中で多くの試料をテストすることができる。このような状況の下、かなり大きなテーパー型キャピラリーであるテーパー型ガラスチューブ(入口径 4.6 cm, 出口径 0.3~2



cm, 長さ 10~40 cm)を使って集束効果を測定したところ, 1.5 ~ 2.3 倍のゲインが確認された [61]. ビーム密度が 2 倍になればビームタイムの滞在日数は半分, あるいは同じ日数なら 2 倍の試料数がテストできることになる. さらにこのテーパ型チューブの形状によるちがいや, 出射ビームの方向分布などの詳細な報告もなされた [62].

その他, 電子の通過実験 [63], 陽電子ビームのガイド効果の検証 [64] も報告されている. 最近では粒子だけでなく可視光域のレーザーを通過させる実験 [65] が行われ, テーパー形状の最適化と組み合わせれば, もっと短い波長の光のマイクロビーム化の基礎データとなる可能性がある.

## 5. まとめ

以上, ひとつひとつの実験に関してはやや早足の紹介となってしまったが, キャピラリーによるガイド効果および集束効果さらに応用についてひとつお見えてきた. この数年間のうちに国内外で多くの成果が報告された. 絶縁体フォイルのマルチキャピラリーでは低速多価イオンを通過させる実験が多くなされ, ガイド効果を中心に低速多価イオンと絶縁体表面との相互作用の研究として位置付けられることが多い [66]. 一方, テーパー型ガラスキャピラリーのほうは, マイクロビームの生成を動機づけとしている研究が多い. しかしながらマイクロビームと言っても低速イオンと高速イオンのビームでは通過メカニズムが異なり, その結果, 低速イオンではガイド効果や集束効果が報告されているが, 高速イオンでは, 実用的なレベルではガイド効果や集束効果は報告されておらず, むしろ, 今まで難しかった大気中, 液体中に取り出せるマイクロビームという側面が注目されている. 冒頭に挙げた A1, A2 および B1, B2 のカテゴリーのどれをとっても荷電粒子の絶縁体表面との相互作用という物理に立脚しており, 物理からの知見で, 絶縁体ビームオプティクスという新しいツールが提供され社会に還元できることは喜ばしい. 一方, 低速多価イオンビームは絶縁体表面に電荷を付与しグラウンド電位の取り方によっては, 絶縁体表面に数 kV の高電圧を印加することが可能である. 2 枚ガラス板実験で見たような高電場での抵抗値スイッチング現象の

観測など実用を意識した研究への寄与も考えられる.

本総説は筆者がかかわった実験のメンバーやキャピラリーを使った実験を実際に行っている方々からの情報をもとに執筆した. この場をお借りし, お礼を申し上げます. 筆者は 2013 年 1 月まで理化学研究所 山崎原子物理研究室に在籍し, 本総説で取り上げた報告のうち, 筆者が共著者になっている報告は全て山崎原子物理研究室での成果である. 筆者が低速多価イオンをテーパ型ガラスキャピラリーに通過させる実験を始めた当初からご指導, ご協力をいただいている山崎泰規 理化学研究所 山崎原子物理研究室 上席研究員, および同研究室の金井保之 専任研究員, 小島隆夫 専任研究員, 小林知洋 専任研究員, 浜垣学 前任技師, Volkhard Mäckel 特別研究員, 岩井良夫氏, Walter Meissl 氏, 荻原清氏, 高知工科大学名誉教授 成沢忠氏には心から感謝の意を表します.

## 参考文献

- [1] N. Stolterfoht, J.-H. Bremer, V. Hoffmann, R. Hellhammer, D. Fink, A. Petrov, and B. Sulik, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 133201 (2002).
- [2] T. Nebiki, T. Yamamoto, T. Narusawa, M. B. H. Breese, E. J. Teo, and F. Watt, *J. Vac. Sci. Technol.* **A 21**, 5, 1671-1674 (2003).
- [3] Y. Yamazaki, S. Ninomiya, F. Koike, H. Masuda, T. Azuma, K. Komaki, K. Kuroki, and M. Sekiguchi, *J. Phys. Soc. Jpn* **65**, 1199-1202 (1996).
- [4] R. Hellhammer, P. Sobocinski, Z. D. Pešić, J. Bundesmann, D. Fink, and N. Stolterfoht, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **B 232**, 235-243 (2005).
- [5] P. Skog, H.-Q. Zhang, and R. Schuch, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 223202 (2008).
- [6] H.-Q. Zhang, P. Skog, and R. Schuch, *Phys. Rev. A* **82**, 052901/1-9 (2010).
- [7] S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, L. Piraux, Z. Juhász, S. Biri, É. Fekete, I. Iván, F. Gáll, B. Sulik, Gy. Víkor, J. Pálinkás, and N. Stolterfoht, *Nanotechnology* **17**, 3915-3919 (2006).
- [8] H. F. Krause, C.R. Vane, and F.W. Meyer, *Phys. Rev. A* **75**, 042901/1-9 (2007).

- [9] P. Skog, I. L. Soroka, A. Johansson, and R. Schuch, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **258**, 145-149 (2007).
- [10] Z. Juhász, B. Sulik, S. Biri, I. Iván, K. Tőkési, É. Fekete, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, Gy. Víkor, E. Takács, and J. Pálinkás, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **267**, 321-325 (2009).
- [11] Y. Y. Wang, D. H. Li, Y. T. Zhao, G. Q. Xiao, Z. F. Xu, F. L. Li, and X. M. Chen, *J. Phys. Conf. Ser.* **194**, 132032 (2009).
- [12] Z. Juhász, S.T.S. Kovács, P. Herczku, R. Rácz, S. Biri, I. Rajta, G.A.B. Gál, S.Z. Szilasi, J. Pálinkás, and B. Sulik, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **279**, 177-181 (2012).
- [13] H.-Q. Zhang, N. Akram, P. Skog, I. L. Soroka, C. Trautmann, and R. Schuch, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 193202 (2012).
- [14] D. Feng, J. X. Shao, L. Zhao, M. C. Ji, X. R. Zou, G. Y. Wang, Y. L. Ma, W. Zhou, H. Zhou, Y. Li, M. Zhou, and X. M. Chen, *Phys. Rev. A* **85**, 064901/1-4 (2012).
- [15] A. R. Milosavljević, Gy. Víkor, Z. D. Pešić, P. Kolarž, D. Šević, B. P. Marinković, S. Mátéfi-Tempfli, M. Mátéfi-Tempfli, and L. Piraux, *Phys. Rev. A* **75**, 030901/1-4 (2007).
- [16] A. R. Milosavljević, J. Jureta, Gy. Víkor, Z. D. Pešić, D. Šević, M. Mátéfi-Tempfli, S. Mátéfi-Tempfli, and B. P. Marinković, *Europhysics Letters* **86**, 23001 (2009).
- [17] N. Stolterfoht, R. Hellhammer, Z. Juhász, B. Sulik, V. Bayer, C. Trautmann, E. Bodewits, A. J. de Nijs, H. M. Dang, and R. Hoekstra, *Phys. Rev. A* **79**, 042902/1-8 (2012).
- [18] K. Schiessl, W. Palfinger, K. Tőkési, H. Nowotny, C. Lemell, and J. Burgdörfer, *Phys. Rev. A* **72**, 062902/1-5 (2005).
- [19] N. Stolterfoht, *Phys. Rev. A* **87**, 032901/1-11 (2013).
- [20] T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, M. Hoshino, T. Nebiki, and T. Narusawa, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 163502/1-3 (2006).
- [21] URL: <http://www.riken.jp/ap/nanobeam/>
- [22] M. Kreller, G. Zschornack, and U. Kentsch, *Nucl. Instrum. Methods B* **269**, 1032-1035 (2011).
- [23] A. Cassimi, T. Muranaka, L. Maunoury, H. Lebius, B. Manil, B. A. Huber, T. Ikeda, Y. Kanai, T. M. Kojima, Y. Iwai, T. Kambara, Y. Yamazaki, T. Nebiki, and T. Narusawa, *Int. J. Nanotechnol.* **5**, 809-817 (2008).
- [24] A. Cassimi, T. Ikeda, L. Maunoury, C. L. Zhou, S. Guillous, A. Mery, H. Lebius, A. Benyagoub, C. Grygiel, H. Khemliche, P. Roncin, H. Merabet, and J. A. Tanis, *Phys. Rev. A* **86**, 062902/1-8 (2012).
- [25] R. Nakayama, M. Tona, N. Nakamura, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, C. Yamada, A. Yamazaki, S. Ohtani, and M. Sakurai, *Nucl. Instrum. Methods B* **267**, 2381-2384 (2009).
- [26] J. Chen, Y. Xue, J. Liu, Y. Wu, F. Ruan, W. Wang, D. Yu, and X. Cai, *Nucl. Instrum. Methods B* **281**, 26-29 (2012).
- [27] T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Iwai, T. M. Kojima, K. Maeshima, W. Meissl, T. Kobayashi, T. Nebiki, S. Miyamoto, G. P. Pokhil, T. Narusawa, N. Imamoto, and Y. Yamazaki, *Surf. Coat. Technol.* **206**, 859-863 (2011).
- [28] URL: <http://narishige-group.com/> 電気生理関連プーラー PE-22
- [29] G. Kowarik, R. J. Berezky, F. Aumayr, and K. Tőkési, *Nucl. Instrum. Methods B* **267**, 2277-2279 (2009).
- [30] E. Gruber, G. Kowarik, F. Ladinig, J. P. Waclawek, D. Schrepf, F. Aumayr, R. J. Berezky, K. Tőkési, P. Gunacker, T. Schweigler, C. Lemell, and J. Burgdörfer, *Phys. Rev. A* **86**, 062901/1-8 (2012).
- [31] T. Ikeda, T. M. Kojima, T. Kobayashi, W. Meissl, V. Mäckel, Y. Kanai and Y. Yamazaki, *J. Phys. Conf. Ser.* **399**, 012007/1-9 (2012).
- [32] 山根正之, 『はじめてガラスを作る人のために』(内田老鶴圃, 東京, 1989).
- [33] 日本板硝子テクノロジー株式会社 web site コラム Glass University, ([http://www.nsg-ntr.com/column/g\\_univ/](http://www.nsg-ntr.com/column/g_univ/)).
- [34] 長谷川保和, 『魅惑のガラスノート』(内田老鶴圃, 東京, 1993).
- [35] 細野秀雄, 神谷利夫, 『透明金属が拓く驚異の世界』(ソフトバンク クリエイティブ, 東

- 京, 2006).
- [36] T. Schweigler, C. Lemell, and J. Burgdörfer, *Nucl. Instrum. Methods B* **269**, 1253-1256 (2011).
- [37] S. Ovshinsky, *Phys. Rev. Lett.* **21**, 1450 (1968).
- [38] T. Shimizu, *OYOBUTSURI* **68**, 10, 1111-1121 (1999).
- [39] 作花済夫, 『ガラスの本』(日刊工業新聞社, 東京, 2004).
- [40] K. Owada, and T. Tsunoda, *NEW GLASS* **23**, 2, 7-20 (2008).
- [41] T. Ikeda, Y. Iwai, T. M. Kojima, S. Onoda, Y. Kanai, and Y. Yamazaki, *Nucl. Instrum. Methods B* **287**, 31-34 (2012).
- [42] T. M. Kojima T. Ikeda, Y. Kanai, Y. Yamazaki, and V. A. Esaulov, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44**, 355201/1-5 (2011).
- [43] J. Hasegawa, S. Jaiyen, C. Polee, N. Chankow, and Y. Oguri, *J. Appl. Phys.* **110**, 044913/1-9 (2011).
- [44] 藤田奈津子, Doctor thesis, 奈良女子大学 (2013).
- [45] N. Fujita, K. Ishii, and H. Ogawa, *Nucl. Instrum. Methods B* **269**, 1023-1025 (2011).
- [46] N. Fujita, K. Ishii, and H. Ogawa, *Phys. Scr. T* **144**, 014033/1-3 (2011).
- [47] H. Tsuchida, S. Tomita, K. Nishimura, R. Murakoshi, M. Naitoh, K. Sasa, S. Ishii, A. Yogo, and A. Itoh, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **293**, 6-10 (2012).
- [48] H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata, and A. Itoh, *Nucl. Instrum. Methods B* in press, (<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.04.094>).
- [49] Y. Iwai, T. Ikeda, T. M. Kojima, Y. Yamazaki, K. Maeshima, N. Imamoto, T. Kobayashi, T. Nebiki, T. Narusawa, and G. P. Pokhil, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 023509/1-3 (2008), 2010年度日本物理学会若手奨励賞(ビーム物理領域)受賞論文(岩井 良夫「細胞手術のための液体中の1個の細胞小器官へのイオン照射の研究」).
- [50] 池田時浩, 特願 2011-161568.
- [51] V. Mäckel, W. Meissl, T. Ikeda, M. Clever, E. Meissl, T. Kobayashi, T. M. Kojima, N. Imamoto, K. Ogiwara, and Y. Yamazaki, submitted to *Rev. Sci. Instrum.*
- [52] M. Kato, W. Meissl, K. Umezawa, T. Ikeda, and Y. Yamazaki, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 193702/1-3 (2012).
- [53] T. Kobayashi, S. Miyamoto, T. Ikeda, T. M. Kojima, K. Ogiwara, and Y. Yamazaki, *Nucl. Instrum. Methods B* **272**, 405-408 (2012).
- [54] M. J. Simon, M. Döbeli, A. M. Müller, and H.-A. Synal, *Nucl. Instrum. Methods B* **273**, 237-240 (2012).
- [55] 例えば、森翔ら, 日本物理学会 第 68 回年次大会 「キャピラリーマイクロビームによる液体ジェット流体の形状測定」, 27pEG-7 (2013).
- [56] D. Sekiba, H. Yonemura, T. Nebiki, M. Wilde, S. Ogura, H. Yamashita, M. Matsumoto, J. Kasagi, Y. Iwamura, T. Itoh, H. Matsuzaki, T. Narusawa, and K. Fukutani, *Nucl. Instrum. Methods B* **266**, 4027-4036 (2008).
- [57] Z. Gong, S. Yan, H. Ma, R. Nie, J. Xue, and Y. Wang, *Nucl. Instrum. Methods B* **272**, 370-373 (2012).
- [58] D. Dudu, I. Vata, and P. Schiopu, University Politehnica of Bucharest, *Scientific Bulletin, Series A* **73**, 1, 189-194 (2011).
- [59] A. Lagutin, *Proceedings of RuPAC 2008*, 12-14, Zvenigorod, Russia (2008).
- [60] F.F. Komarov, A.S. Kamyshan, and P.A. Grishin, *Proceedings of the International Conference Nanomaterials : Applications and Properties*, 1, 3, 03AET05/1-3 (2012).
- [61] T. M. Kojima, D. Tomono, T. Ikeda, K. Ishida, Y. Iwai, M. Iwasaki, Y. Matsuda, T. Matsuzaki, and Y. Yamazaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 9, 093501/1-3 (2007).
- [62] D. Tomono, T. M. Kojima, K. Ishida, T. Ikeda, Y. Iwai, M. Tokuda, Y. Kanazawa, Y. Matsuda, T. Matsuzaki, M. Iwasaki, and Y. Yamazaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 044501/1-7 (2011), 2012年度日本中間子科学界若手奨励賞受賞論文(友野 大「キャピラリー法によるミュオンビーム収束技術の研究」)の

一部。

- [63] S. J. Wickramarachchi, T. Ikeda, D. Keerthisinghe, B. S. Dassanayake, and J. A. Tanis, Nucl. Instrum. Methods **B** in press, (<http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2013.03.046>).
- [64] N. Oshima, Y. Iwai, T. M. Kojima, T. Ikeda, Y. Kanazawa, M. Hoshino, R. Suzuki, and Y. Yamazaki, Mater. Sci. Forum **607**, 263-265 (2009).
- [65] K. Katoh, Wei-Guo Jin, T. Minowa, and T. Ikeda, Proceedings of the 12<sup>th</sup> Asia Pacific Physics Conference, Makuhari, Chiba, July (2013).
- [66] C. Lemell, J. Burgdörfer, and F. Aumayr, Progress in Surface Science **88**, 237-278 (2013).

## 「原子衝突のキーワード」

### イオン移動度 (ion mobility)

一様電場  $E$  の存在する気体分子が充満する容器内の荷電粒子は、気体分子との衝突による減速と電場による加速を繰り返し、一定の平均速度  $v_d$  で容器内を移動する。この時、 $v_d$  (drift velocity) と  $E$  の間には  $v_d = KE$  の関係が存在し、比例係数  $K$  を移動度、特に荷電粒子としてイオンをもちいた場合にはイオン移動度とよぶ。  $v_d$  は気体の数密度  $N$  にも依存するため、通常移動度を議論するときには、ロシュミット数  $N_0$  で規格化された換算移動度  $K_0$  を使用する：

$$v_d = K_0 N_0 \frac{E}{N}. \quad (1)$$

同一の気体温度における drift velocity 測定で得られる  $K_0$  は  $E/N$  でスケールすることができ、単位には  $1 \text{ Td} = 10^{-17} \text{ Vcm}^2$  で定義される Td (townsend) をもちいる。異なる気体温度における  $K_0$  の比較は、イオンと気体分子の平均衝突エネルギーを温度で表現した実効温度  $T_{\text{eff}}$  を使用することで可能になる。実効温度については、すでに「原子衝突のキーワード」で取り上げられているので、そちらを参照されたい [1]。

理論的には、電場の存在する気体分子中のイオン輸送特性は、Boltzmann 方程式から求められる一温度、二温度、三温度理論 (近似精度の悪い順) により記述される [2]。縦と横方向の拡散係数の違いまで精密に記述するには三温度理論が必要であるが、換算移動度を考えるだけであれば二温度理論で十分実用的である。二温度理論では、換算移動度は運動量移行断面積を衝突エネルギー  $\epsilon$  の分布で平均化した一次の衝突積分  $\Omega^{(1,1)}(T_{\text{eff}})$  をもちいて、

$$K_0 = \frac{3e}{16N_0} \left( \frac{2\pi}{\mu k_B T_{\text{eff}}} \right)^{1/2} \frac{1 + \alpha}{\Omega^{(1,1)}(T_{\text{eff}})} \quad (2)$$

$$\Omega^{(1,1)}(T_{\text{eff}}) = \frac{1}{2(k_B T_{\text{eff}})^3} \times \int_0^\infty Q(\epsilon) \exp\left(-\frac{\epsilon}{k_B T_{\text{eff}}}\right) \epsilon^2 d\epsilon \quad (3)$$

と表すことができる。ここで、 $\mu$  は換算質量、 $Q(\epsilon)$  は運動量移行断面積である。 $\alpha$  は高次の補正項であるが、この項を無視しても換算移動度を実験誤差範囲内で再現できるものが多く、 $\alpha=0$  とすることが多い。上式から明らかのように、イオン移動度は運動量移行断面積によって決まる。運動量移行断面積と粒子間相互作用ポテンシャルは密接な関係にあるため、相互作用ポテンシャルの検定に移動度が用いられることがある。また、イオン移動度は低衝突エネルギー極限 ( $E/N \rightarrow 0$ ,  $T \rightarrow 0$ ) で、気体分子の分極率  $\alpha_d / \text{\AA}^3$  と  $\mu / \text{au}$  のみで決まる分極極限の移動度  $K_{\text{pol}}$  と呼ばれるイオンの電荷によらない値になることが知られている：

$$K_{\text{pol}} = \frac{13.853}{(\alpha_d \mu)^{1/2}} \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}. \quad (4)$$

これは、運動量移行断面積を分極ポテンシャルのみをもちいて計算することで得られ、実際多くの原子イオンの移動度で  $K_{\text{pol}}$  に漸近することが確かめられている。しかし、最近いくつかの原子イオンや分子イオンをもちいた実験において、低衝突エネルギー領域で  $K_{\text{pol}}$  に近づかない例も報告されている [3]。

イオン移動度は物理化学的な研究対象であるだけでなく、イオン移動度分析 (Ion mobility spectrometry) という分析技術に応用されている。イオン移動度分析は、質量/電荷比が等しく質量分析では区別できない構造異性体をもつ分子・クラスターイオン等の分離や構造解析が可能であり、異性体の構造決定や反応性の異性体依存性の測定で成果を上げている。また、微量成分分析、エアロゾル・ナノ粒子の分析や麻薬・危険物分析等にも幅広く利用されている。

(北海道大学 日高宏)

### 参考文献

- [1] 田沼肇, 原子衝突研究協会誌 しょうとつ, **8**(6), 35 (2011).
- [2] E. A. Mason and E. W. McDaniel, 'Transport Properties of Ions in Gases', (John Wiley, New York) 1988.
- [3] 田沼肇, 日本物理学会誌, **59**, 883 (2004).



## 「原子衝突のキーワード」

### 阻止能と線エネルギー付与 (Stopping power and Linear energy transfer)

阻止能と線エネルギー付与(LET)は、衝突相互作用におけるエネルギー付与を定量する基本的な物理量である。阻止能は、粒子から標的物質へのエネルギー移行や粒子の減速過程等を考える際に用いられ、放射線物理学における照射効果研究、イオンビームによる物質分析技術(ラザフォード後方散乱法による深さ分析)や半導体製造におけるイオン注入制御工学など幅広い理工学分野で使われている。他方、LETは、主に放射線生物・医学分野で使われ、粒子線がん治療における線量分布を定量する際に用いられる。阻止能とLETは、同じ次元を持ち、似たような概念があることから、両者を混同して用いられている現状がある。本稿では、これらの用語の定義を整理し、阻止能とLETとの違いについて説明する。

阻止能の本質的な定義として、(1)「物質の阻止能」と表現するように物質を主体としたものであること、(2)対象としている入射粒子はイオンや電子などの荷電粒子のみであること(X線・ $\gamma$ 線などの光子や中性子などの非荷電粒子は対象としない)、(3)エネルギー損失過程の違いにより次の3つの成分があること(①標的の電離・励起過程による電子的阻止能、②標的原子との弾性衝突による核的阻止能、③標的核のクーロン場において荷電粒子の軌道の偏向に伴う制動放射による放射阻止能)、などが挙げられる。阻止能の定量的意味は、物質との電磁相互作用において入射粒子が単位長さ  $dx$  当たり失う平均のエネルギー  $dE$  であり、 $S = -dE/dx$  と表される。この式は、荷電粒子の侵入を防ぐのに働く力を表しており、右辺の負の符号は抵抗力を意味している。

一方、線エネルギー付与の定義として、(1)入射粒子を主体としたものであること、(2)対象としている入射粒子は全ての放射線(荷電粒子、非荷電粒子どちらも含む)であること、(3)対象としているエネルギー損失過程は、標的の電離過程によるもの(弾性衝突によるものと制動放射によるものは含まれていない)であること、などが挙げられる。LET

の定量的意味は、放射線が単位長さ当たりに電離過程で失う平均エネルギーである。すなわち、阻止能の量としてある一部分に相当するため、制限線電子的阻止能(restricted linear electronic stopping power)とも呼ばれる。電離過程におけるエネルギー移行には、二次電子の空間分布やエネルギー分布が関連している。二次電子は、放射線の種類が荷電粒子(イオンや電子)の場合、クーロン相互作用による直接過程によって生じ、他方、非荷電粒子の場合、相互作用によって発生した二次荷電粒子によって生じる。後者の二次荷電粒子とは、光子の場合は光電効果による光電子やコンプトン効果による反跳電子などであり、中性子の場合は反跳陽子や核反応によって生じた荷電粒子である。発生する二次電子の空間分布は、イオンや中性子の場合には高密度になっており、一方、電子や光子の場合には低密度になっている。このことから、イオンや中性子は高LET放射線、電子や光子は低LET放射線と呼ばれ、LETは線質の違いを形容する際にも用いられる(阻止能には高阻止能や低阻止能といった言い方はない)。二次電子のエネルギーはある分布を持ち、付与エネルギーを定量する際は、二次電子のエネルギーの上限を決める必要がある。このようなことから、LETの表記は、 $L_{\Delta} = dE_{\Delta}/dx$  と表され、ここで、 $\Delta$ は二次電子のエネルギーの上限、 $dE_{\Delta}$ は電離衝突によって $\Delta$ 以下のエネルギーを持つ二次電子の生成に費やされたエネルギーを表している。

電子的阻止能において、標的電子に移行される最大エネルギー、言い換えると、束縛エネルギーを無視した場合の二次電子の運動エネルギーの上限値は、荷電粒子(質量を  $M$ 、運動エネルギーを  $E$ )と静止している電子(質量を  $m$ )との正面衝突を考えると、 $M \gg m$  のとき  $4mE/M$  となる。イオンに対する電子的阻止能は、イオン速度が標的電子の平均速度に比べて十分に速いとき優勢になり、このとき、核的阻止能や放射阻止能は無視できる程小さい。このような条件において、LETの $\Delta$ が先に述べた二次電子の運動エネルギーの上限値になると、阻止能とLETの量的比較において両者は同じになる。

以上のような違いを意識して、これらの用語を用いる必要がある。

(京大院工 土田 秀次)

---

## 2013 年度 役員・委員会等

### 会長

高橋正彦（東北大学）

### 幹事

渡部直樹（北海道大学）（副会長）                      森下 亨（電気通信大学）

足立純一（高エネルギー加速器研究機構）              星野正光（上智大学）

### 運営委員

足立純一（高エネルギー加速器研究機構）              岸本直樹（東北大学）

小島隆夫（理化学研究所）                                  富田成夫（筑波大学）

日高 宏（北海道大学）                                      渡部直樹（北海道大学）

渡辺 昇（東北大学）    東 俊行（理化学研究所）

岡田邦宏（上智大学）    小田切丈（上智大学）

佐甲徳栄（日本大学）    城丸春夫（首都大学東京）

星野正光（上智大学）    中村信行（電気通信大学）

森下 亨（電気通信大学）

### 常置委員会等

編集委員会    委員長： 渡部直樹（北海道大学）

行事委員会    委員長： 森下 亨（電気通信大学）

広報渉外委員会    委員長： 足立純一（高エネルギー加速器研究機構）

若手奨励賞選考委員会    委員長： 大野公一（豊田理化学研究所）

国際会議発表奨励者選考委員会                                      委員長： 高橋正彦（東北大学）

学会事務局    担当幹事：星野正光（上智大学）

### 編集委員会

足立純一，岸本直樹，長嶋泰之，中井陽一，羽馬哲也，早川滋雄，日高 宏

森林健悟，渡部直樹

---

しょうとつ 第10巻 第5号 （通巻 54 号）

Journal of Atomic Collision Research

©原子衝突学会 2013

<http://www.atomiccollision.jp/>

発行: 2013 年 9 月 17 日

配信: 原子衝突学会 事務局

<acr-post@bunken.co.jp>