

博士論文

体積生成負水素イオン源におけるセシウム効果の研究

総合研究大学院大学  
数物科学研究科  
加速器科学専攻

奥 山 利 久

平成3年度

# 目次

第1章 序論	1
第2章 体積生成型負水素イオン源	5
2.1 体積生成型負水素イオン源における負水素イオン生成機構	5
2.2 体積生成型負イオン源の構造とビーム特性	10
第3章 体積生成型負水素イオン源へのセシウム注入実験	18
3.1 セシウム注入実験の方法	18
3.2 セシウム注入実験結果	19
3.3 セシウム効果の原因を特定する実験	25
3.3.1 仕事関数の測定	26
3.3.2 セシウムのスパッタリング実験	30
第4章 負水素イオンの表面生成	35
4.1 金属表面における負水素イオン生成機構	36
4.2 金属表面における負水素イオン生成効率	46
第5章 セシウムを付着させた金属表面における負水素イオン生成の実験	50
5.1 熱運動速度の水素原子からの負水素イオンの生成実験	51

5.1.1	実験装置	51
5.1.2	負水素イオン生成効率の測定	60
5.1.3	実験値と理論値の比較	67
5.2	低エネルギーの正の水素イオンからの負水素イオン生成実験	71
5.2.1	実験装置	71
5.2.2	負水素イオン生成効率の測定	74
5.2.3	実験値と理論値との比較	76
5.3	体積生成型の負水素イオン源におけるセシウム効果に対する評価	80
第6章 結論		82
謝辞		85
Appendix A	光電子放出を利用した仕事関数の測定	86
Appendix B	準位シフトの計算の補足	90
Appendix C	1,s 波動関数に対する準位の拡大幅の計算式の導出	92
Appendix D	Keldysh法によるイオン化確率計算式の導出	94
Appendix E	低エネルギーの水素原子からの負水素イオン生成効率式の導出	103
Appendix F	水素原子線の加熱について	105
参考文献		107

## 第1章 序論

負水素イオン源の開発はここ10年の間に著しく進展してきた。現在、負水素イオン源は、主に陽子加速器のイオン源や核融合のプラズマ加熱のための中性粒子入射装置のイオン源として使用されている。当初は、これらの機器では正の水素イオン源が使用されていた。しかしながら、加速器の分野では、陽子シンクロトロンにおいて、ビーム強度を向上させるために荷電変換による多重入射が一般的になり、負水素イオン源が必要欠くべからざるものになった。また、核融合の分野においても、中性粒子の入射エネルギーが増大するにつれて正イオンからの中性化では荷電変換の断面積が小さくなり、中性化効率が悪くなるために、負水素イオン源が使用されるようになった。また、近年では負水素イオン源は、その高性能化に伴い、他の分野への応用も期待されている。

現在利用されている負水素イオンの生成法は、大きく分けると、表面生成法と体積生成法の2種類である。表面生成法では、水素プラズマ中にコンバーターと呼ばれる電極を配置し、まずこの表面を正の水素イオンでスパッタする。さらに、表面から散乱する水素原子や水素イオンに金属中の電子を付着させて負の水素イオンを生成させる。コンバーターは、一般にモリブデンや銅で作られており、そのままでは表面の仕事関数が高く、水素原子あるいは正水素イオンへの金属中の電子の付着確率が小さい。このため、コンバーターの表面にセシウムを吸着させることにより、表面の仕事関数を低下させて負水素イオン生成効率を上げている。表面生成法では、コンバーターの表面形状を引き出し電極に対して凹型にすることによって、負水素イオンビームの収束性を向上させることができる。このため、高強度のビームの引き出しが可能である。しかしながら、このイオン源ではコンバーター表面を常にセシウムで覆う必要があるために、連続的にセシウムを供給しなければならない。このため、ビームの下流側の機器がセシウムによって汚染され、特にRFQ (Radio Frequency Quadrupole) リニアックのような高電界を利用する加速器では放電限界が低下する怖れがある。

一方、体積生成法は励起水素分子と電子の解離性付着を利用して、プラズマ中で直接負水素イオンを生成させる方法である。この生成過程は、水素分子が高い温度の電子 ( $T > 5 \text{ eV}$ ) と衝突して励起水素分子となる過程と、この励起水素分子に低い温度の電子 ( $T < 1 \text{ eV}$ ) が付着して負水素イオンが生成される過程からなる2段階の生成過程である。体積生成型の負水素イオン源では、単位断面積あたりのビーム強度は表面生成型のイオン源に比べると少ない。また、水素ガス使用量も表面生成型のイオン源より一桁近く多い。しかしながら、体積生成法はセシウムを必要としないため、セシウム汚染が



ないという利点がある。また、この方法ではプラズマ領域を広く作ることができるために、広範囲にわたって負水素イオンを生成させることができる。このため、引き出し電極を多孔にして、引き出し断面をプラズマ領域の断面と同じぐらいにすることにより、大電流の負水素イオンを引き出すことが可能である。

以上のような負水素イオンの生成法の特徴から、加速器では、現在のところはビーム強度の面で表面生成型の負水素イオン源が主に使用されている。高エネルギー物理学研究所においても、1.2 GeVの陽子シンクロトロン/ion源として、表面生成型の負水素イオン源を使用しており、最大30 mAのビームを引き出している。しかしながら、近年、加速器の分野においても、セシウムを使用せずに負水素イオンが生成できる体積生成法が注目され、この型の負水素イオン源の開発が盛んに行われるようになってきている。

体積生成法の特徴であるプラズマから直接負イオンを引き出す方法は、1959年に、Moakらがデュオプラズマトロンから11  $\mu$ Aの負水素イオンビームを引き出すことに成功して以後<sup>[1]</sup>、各地で研究されるようになった。そして、1965年には、Collins<sup>[2]</sup>、Lawrence<sup>[3]</sup>らによって、ビーム強度を向上させる方法としてプラズマ中心の軸と引き出し電極の中心軸をわずかにずらせた構造のデュオプラズマトロンが開発された。負イオンを生成させると考えられる低い温度の電子は、プラズマ中心よりもプラズマの周囲の方に多量に存在する。したがって、軸をずらすことにより、プラズマ外周部で豊富に生成された負イオンが引き出されやすくなる。同様の現象は、1965年に、EhlerらによってPIG熱陰極放電を利用した負イオン源でも発見され、5 mAの負水素イオンビームの引き出しに成功している<sup>[4]</sup>。しかしながら、これらのイオン源では、プラズマ領域が小さくプラズマ診断が困難であったため、負イオンのプラズマ中における生成過程は明らかにされていなかった。

その後、負イオン源の開発と並行して、プラズマ中における負イオン、特に負水素イオンの生成過程を調べる実験や理論的解析が行われた<sup>[5]</sup>。その結果、体積生成型の負水素イオン源では、基底状態の水素分子からの直接の負水素イオン生成過程以外に、中間過程を経る生成過程によっても負水素イオンが生成されていると考えられるようになった。そして、現在では、励起水素分子と電子の解離性付着が負水素イオン生成の支配的生成過程であると考えられている<sup>[6] - [10]</sup>。

この解離性付着反応を有効に行う方法として、現在用いられているようなプラズマ領域を2つに分けた負水素イオン源がLBL<sup>[11]</sup>やCulham<sup>[12]</sup>で開発された。このイオン源は、プラズマ領域を高い温度の電子領域と低い温度の電子領域に分割することによ

り、励起水素分子の生成と負水素イオンの生成を別々の領域で行う構造にしたイオン源である。1980年代にこの方式の負水素イオン源の開発が盛んになり、現在では、体積生成型の負イオン源という、この方式のものをさすことが多い。

さらに、近年、LBLのLeungらによって、体積生成型の負水素イオン源にセシウム蒸気を注入するとビーム強度が著しく増加することが報告された<sup>[13]</sup>。高エネルギー物理学研究所においても、体積生成型の負水素イオン源にセシウムを注入する実験を行った結果、わずかな量のセシウム蒸気を注入することによってビーム強度が著しく増加することを確認した。セシウムを使用することは体積生成法の長所が失われる印象を与えるが、その消費量はセシウムを連続して供給する必要がある表面生成型の負水素イオン源と比較するとはるかに少ない。したがって、体積生成型の負水素イオン源において、わずかな量のセシウム注入で表面生成型のイオン源に匹敵するビーム強度が得られる可能性があることは、加速器への応用を考えるに、非常に魅力的なことである。

セシウム効果の原因としていくつかの事柄が考えられてきたが、これまでは明らかにされてはいない。したがって、セシウム効果の原因を明らかにして、セシウム注入時の負水素イオンの生成過程を把握することは、高強度の体積生成型の負水素イオン源を開発するために非常に大切なことである。本研究の目的は、このセシウム注入時の負水素イオンの生成機構を明らかにすることである。

本研究では、まず小型の体積生成型の負水素イオン源を新たに開発し、セシウムの効果の原因を調べる実験を行った。その結果、プラズマ電極にセシウムが吸着することによってのみビーム強度が増加していることが判明した。そして、体積生成型のイオン源ではあるが、負水素イオンの表面生成過程がビーム強度の増加に重要な役割を果たしていることがわかった。この場合、プラズマ中に存在する水素原子 ( $H^0$ )、水素イオン ( $H^+$ 、 $H_2^+$ および $H_3^+$ ) が、セシウムが吸着して仕事関数の低下した金属表面に当たる際に、金属中の電子を捕獲して負水素イオンになると考えられる。

体積生成型の負水素イオン源において、セシウム注入時の表面生成効果についてより詳しく調べるためには、低エネルギーの水素原子、水素イオンからの表面生成による負水素イオンの生成効率を正確に把握することが必要である。このため、本研究では、低エネルギーの水素原子および水素イオンをセシウムを吸着させた金属表面に当てて、負水素イオンの表面生成の効率を求める実験を行った。まず、セシウムを吸着させたモリブデン表面に熱運動速度の水素原子を入射させて、生成する負水素イオンを測定した。さらに、モリブデン表面に到達している水素原子のフラックス量を直接測定し、その結果と負水素イオンの生成量の測定結果から負水素イオンの生成効率を求めた。また、生

成効率の表面の仕事関数と水素原子の速度に対する依存性も測定した。さらに、これら実験結果と量子力学的モデルに基づく理論計算との比較を行った。そして、負水素イオンの生成効率式の低エネルギー領域における有効性を検討した。次に、低エネルギーの水素イオンからの負水素イオンの生成効率を測定した。この実験では、約1 eVの $H^+$ 、 $H_2^+$ および $H_3^+$ イオンを個々にターゲット表面に入射させることによって、その生成効率を求めた。

本論文は6章から構成されている。第2章で体積生成法による負水素イオンの生成機構と、体積生成型の負水素イオン源の構造とその特性について説明する。次に、第3章でセシウム効果について述べ、セシウム効果の原因を実験から明らかにした過程と結果を述べる。第4章と第5章は、負水素イオンの表面生成の研究に関する部分である。まず、第4章で負イオンの表面生成機構について説明し、負イオンの生成効率式を求める。次に、第5章でセシウムを吸着させた金属表面における低エネルギーの水素原子と水素イオンからの負水素イオンの生成効率の測定実験について述べる。そして、実験値と理論値との比較を行う。また、測定した負水素イオンの生成効率に基づいて、体積生成型の負水素イオン源において、セシウム注入時に表面生成によってもたらされるビーム強度増加の評価を行う。第6章はまとめである。

## 第2章 体積生成型負水素イオン源

水素プラズマ中における負水素イオンは、主として励起水素分子と電子の解離性付着反応によって生成されることがわかってきた。そして、1 eV 以下の低い温度の電子がこの反応に寄与していることがわかってきた。このため、磁気フィルターを使用してプラズマ領域を高い温度の電子領域と低い温度の電子領域に分離することによって、低い温度の電子が多量に存在するプラズマ領域を形成できるようにした新しいタイプの体積生成型負水素イオン源が開発された<sup>[11][12]</sup>。

本章では、まず、この方式の負水素イオン源における負水素イオンの生成機構について述べる。次に、本研究のために開発した小型の体積生成型の負水素イオン源について、その構造を説明する。そして、セシウムを注入しない状態でこの負水素イオン源からビームを引き出した結果について述べる。

### 2.1 体積生成型負水素イオン源における負水素イオン生成機構

水素プラズマ中における負水素イオンの生成過程としては、表2-1に示すような生成過程がある。表中には、これまでに求められている各生成過程における反応断面積の最大値 $\sigma_{\max}$ と最大値に対する衝突電子のエネルギーを示した。

負水素イオンの生成過程としては、当初は水素分子のpolar dissociationと電子の $H_2^+$ イオンとの解離性再結合が考えられていた。しかしながら、これらの反応断面積から計算される負水素イオンの生成密度は、測定値の100分の1であることが示された<sup>[6]</sup>。また、プラズマ密度の増加に対して負水素イオンの密度が非線形的に増加することも示された<sup>[14]</sup>。このため、水素原子や $H_2^+$ イオンからの直接的な負水素イオン生成だけではイオン源中の負水素イオン生成過程が説明できず、中間過程を経る負水素イオンの生成過程が考えられた。

負水素イオンの生成に最も寄与していると考えられているのは励起水素分子と電子の解離性付着である。表中において、 $H_2^*(v)$ は励起状態の水素分子を表わし、 $v$ は励起レベルを示す。この解離性付着反応の水素分子の励起レベルに対する反応断面積の最大値 $\sigma_{\max}$ と最大値に対する衝突電子のエネルギーは、表2-2に示すように、WadehraとBardsleyによって理論的に求められている<sup>[10]</sup>。それによると、この解離性付着反応は、基底状態( $v=0$ )に対しては、 $\sigma_{\max}=2.8 \times 10^{-21} \text{cm}^2$ であり、 $\sigma_{\max}$ に対する

表2-1 水素プラズマ中における負水素イオン生成過程

生成過程	$\sigma_{max}$ (cm <sup>2</sup> )	$\sigma_{max}$ に対する衝突電子のエネルギー (eV)
1. 励起水素分子と電子の解離性付着		
$H_2^*(v) + e \rightarrow H^- + H$	$\sim 4 \times 10^{-16}$	0.1~1
2. 水素分子イオンと電子の解離性再結合		
$H_3^+ + e \rightarrow H^- + H_2^+$	$\sim 1.6 \times 10^{-18}$	5~9
$H_2^+ + e \rightarrow H^- + H^+$	$\sim 10^{-17}$	3
3. 準安定水素分子の解離性付着		
$H_2(C^3\pi_u) + e \rightarrow H^- + H$	$\sim 10^{-18} \sim 2 \times 10^{-17}$	0.1~1
4. Polar dissociation		
$H_2 + e \rightarrow H^- + H^+ + e$	$1.7 \times 10^{-20}$	3.8

表2-2 励起水素分子の励起レベルに対する反応断面積と対応する衝突電子のエネルギー

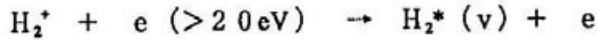
励起レベル (v)	$\sigma_{max}$ (cm <sup>2</sup> )	$\sigma_{max}$ に対する衝突電子のエネルギー (eV)
0	$2.8 \times 10^{-21}$	3.75
1	$8.3 \times 10^{-20}$	3.23
2	$1.0 \times 10^{-18}$	2.75
3	$7.5 \times 10^{-18}$	2.29
4	$3.8 \times 10^{-17}$	1.86
5	$1.2 \times 10^{-16}$	1.46
6	$2.9 \times 10^{-16}$	1.08
7	$4.3 \times 10^{-16}$	0.74
8	$3.2 \times 10^{-16}$	0.42
9	$4.3 \times 10^{-16}$	0.14

参考文献 [10] による

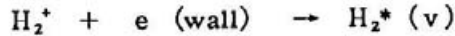
衝突電子のエネルギーは3.75eVである。しかしながら、励起レベルが大きくなると反応断面積が増加し、対応する衝突電子のエネルギーは低下する。反応断面積はv=7~9の励起レベルで最大となる。この値は他の生成過程の反応断面積より1桁以上大きい。励起レベルがv>9以上になると、反応断面積は小さくなっていく。この結果、各励起レベルの水素分子の密度を考慮すると、v=5~11の励起レベルで負水素イオンの生成密度が最大になると考えられている<sup>[15]</sup>。そして、~1eV以下のエネルギーの電子が解離性付着に重要な役割を果たしていると考えられている。

表2-3 水素プラズマ中における励起水素分子の生成過程

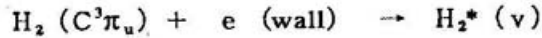
1. 水素分子と高いエネルギーの電子との衝突



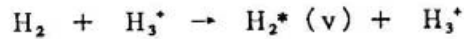
2. 水素イオンの壁への衝突によるAuger neutralization



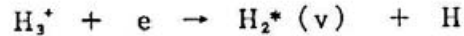
3. 準安定水素分子の壁への衝突によるAuger relaxation



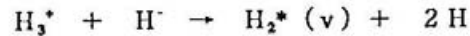
4. 水素分子と水素イオンとの衝突



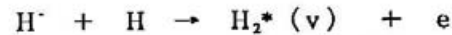
5.  $\text{H}_3^+$ イオンの付着再結合



6.  $\text{H}^+$ イオンと $\text{H}_2^+$ イオン、 $\text{H}_3^+$ イオンの中性化



7. 結合性脱離



励起水素分子の生成過程としては、表2-3に示すような過程がある。このうち、生成量に寄与すると考えられているのは、水素分子と高いエネルギーの電子との衝突、水素イオンの壁への衝突によるAuger neutralization、水素の準安定分子の壁への衝突によるAuger relaxationである。低い電子密度状態 ( $10^{11}$  electrons/cm<sup>3</sup>以下)で放電電圧が40V以下では、Auger relaxationが支配的である<sup>[15]</sup>。また、ガス圧が比較的低く、 $\text{H}_2^+$ イオンや $\text{H}_3^+$ イオンが多くなるような放電をさせている場合にはAuger neutralizationが支配的になりえる<sup>[16]</sup>。しかし、プラズマ密度が高くなると、これらの生成過程による励起水素分子の生成量は飽和してしまう。プラズマ密度が $10^{12}$  ions/cm<sup>3</sup>以上になると、水素分子の密度も相対的に高くなり、高いエネルギーの電子との衝突によって生成される励起水素分子の密度が高くなる。この過程では20eV以上のエネルギーの電子が励起水素分子の生成に直接寄与すると考えられている<sup>[17]</sup>。



表2-4 負水素イオンの消滅過程

消滅過程	$\sigma_{max}$ (cm <sup>2</sup> )	$\sigma_{max}$ に対する衝突電子のエネルギー (eV)
1. 衝突脱離		
$H^- + e \rightarrow H + 2e$	$4 \times 10^{-15}$	15
$H^- + H \rightarrow 2H + e$	$1.6 \times 10^{-15}$	500
$H^- + H_2 \rightarrow H + H_2 + e$	$\sim 10^{-15}$	$10^4$
2. 結合性脱離		
$H^- + H \rightarrow H_2 + e$		
3. 荷電変換		
$H^- + H^+ \rightarrow 2H$	$2.5 \times 10^{-13}$	
$H^- + H_2^+ \rightarrow H + H_2$		参考文献 [5] による

負水素イオンの消滅に対する反応断面積は、生成の反応断面積よりもはるかに大きい。表2-4に主な負水素イオンの消滅過程と反応断面積の最大値および最大値に対する衝突電子のエネルギーを示す。表からわかるように、水素イオンとの衝突による荷電変換が負水素イオンの消滅に最も大きく影響を与える。

体積生成型の負水素イオン源は、以上に示した負水素イオンの生成・消滅過程を踏まえて、負水素イオンの生成効率が高くなるようにしたイオン源である。このイオン源では、プラズマ領域を高い温度の電子領域と低い温度の電子領域に分離し、高い温度の電子領域における水素分子の励起、低い温度の電子領域における解離性付着の2段階の生成過程を効率良く行えるようにして、負水素イオンを生成させている。

図2-1に、体積生成型の負水素イオン源における負水素イオンの生成機構を模式的に示す。このイオン源では、プラズマ容器の周囲に永久磁石を配置することによって、容器内部にカスプ磁場を作り、プラズマを容器内に閉じこめている。これによって、プラズマの閉じ込め効率を向上させ、プラズマ密度を高くして、高い温度の電子と水素分子との衝突による励起水素分子の生成量を増加させている。そして、このプラズマを主として高い温度の電子 ( $T > 5\text{eV}$ ) が存在する領域Aと、主として低い温度の電子 ( $T < 1\text{eV}$ ) が存在する領域Bに分離させている。領域Aにはフィラメントが配置されており、アーク放電によりプラズマが生成される。一方、領域Bは負水素イオンの生成・引き出し領域になる。

プラズマ領域の分離は、プラズマ領域中にビーム軸と垂直な平面内に磁場を作り、い

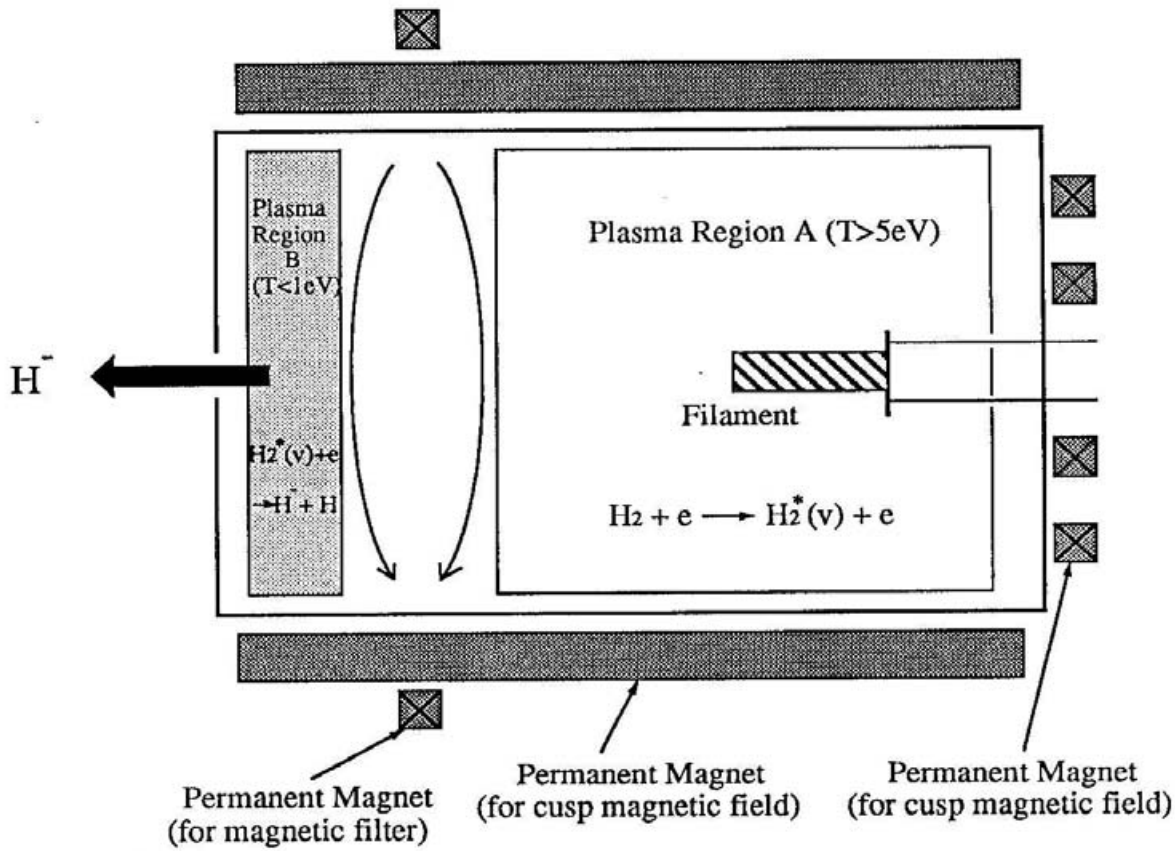


図 2 - 1 体積生成型負水素イオン源における負水素イオン生成機構の模式図

いわゆる磁気フィルターを作っている。小型の体積生成型の負水素イオン源では、図 2 - 1 に示すように、プラズマ容器の外側に 1 組の永久磁石を配置して、プラズマ領域中に双極磁場による磁気フィルターを形成させている。磁気フィルターの磁場は、数 100 gauss·cm 程度であり、水素イオンは磁気フィルターを直接通り抜けることができる。これに対して、電子はラーモア半径が小さいために磁気フィルターを直接通り抜けることはできないが、水素イオンや水素原子あるいは水素分子との衝突による拡散によって、磁気フィルターを通り抜けて領域 B に行くことができる。エネルギーの小さい電子ほど水素イオンや水素原子あるいは水素分子との衝突断面積が大きく、平均自由行程が短い。したがって、拡散過程によって磁気フィルターを通り抜ける確率が高い。この結果、通常イオン源中の電子のエネルギー分布のピークが 5 eV 程度であることを考慮すると<sup>[18]</sup>、領域 B は低い温度の電子の密度が高くなると考えられる。

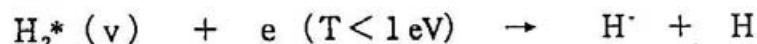
負水素イオンの生成に対する反応断面積等を考慮すると、この 2 つのプラズマ領域において、主として次の 2 段階の生成過程を経て負水素イオンが生成されていると考えられている。



### 1) 領域Aにおける水素分子の励起過程



### 2) 領域Bにおける励起水素分子と電子の解離性付着過程



領域Bにエネルギーの異なる電子を入射して、引き出される負水素イオン量を測定し、領域Bにおける負水素イオンの生成過程を間接的に調べた実験も行われている<sup>[19]</sup>。その結果、0.5～1eVのエネルギーの電子を入射したときに負水素イオンの生成量が増加することがわかっている。したがって、このことから励起水素分子と低エネルギーの電子の解離性付着による負水素イオン生成は、領域Bにおける負水素イオンの支配的生成過程であることが裏付けられている。

## 2.2 体積生成型負水素イオン源の構造とビーム特性

実験に使用した小型の体積生成型の負水素イオン源の断面構造を図2-2に示す。このイオン源のプラズマ容器は、内径110mm、長さ164mmの円筒形状であり、材質はSUS304である。プラズマ容器は水冷されており、運転時のフィラメントからの輻射熱とプラズマ衝突による容器の温度上昇を抑えている。プラズマ容器の円筒部外周と後部フランジ内には、断面寸法12x10mmのサマリウムコバルト(SmCo)の永久磁石が配置してあり、容器内にカスプ磁場を作りプラズマを閉じこめている。プラズマ容器の円筒断面における磁場分布は図2-3に示す。カスプ磁場は永久磁石を円周方向に45度間隔で8列配置して作り出しており、プラズマ容器内面上で約400gaussの磁場強度が得られている。

プラズマ領域を2つに分離する磁気フィルターは、1組のSmCoの永久磁石をイオン源外部のプラズマ電極の両端に配置することにより生成した。この磁気フィルターの磁場分布は図2-4に示す。このイオン源では、フィルター磁場の強さがプラズマ電極の表面近傍で最大になるように永久磁石を配置した。

プラズマ容器のビーム引き出し側には、セラミックの絶縁板を介してプラズマ電極が取り付けられている。プラズマ電極は厚さ10mmの銅板製である。プラズマ電極の中央部には厚さ5mmのモリブデン製の電極が取り付けられている。この電極の引き出し孔の口径は7.5mmであり、ここからビームが引き出される。また、プラズマ電極は、セラミックの絶縁板を介して、イオン源のテスト用の真空容器の引き出し電極にイオン源本

# KEK Volume H<sup>-</sup> Ion Source

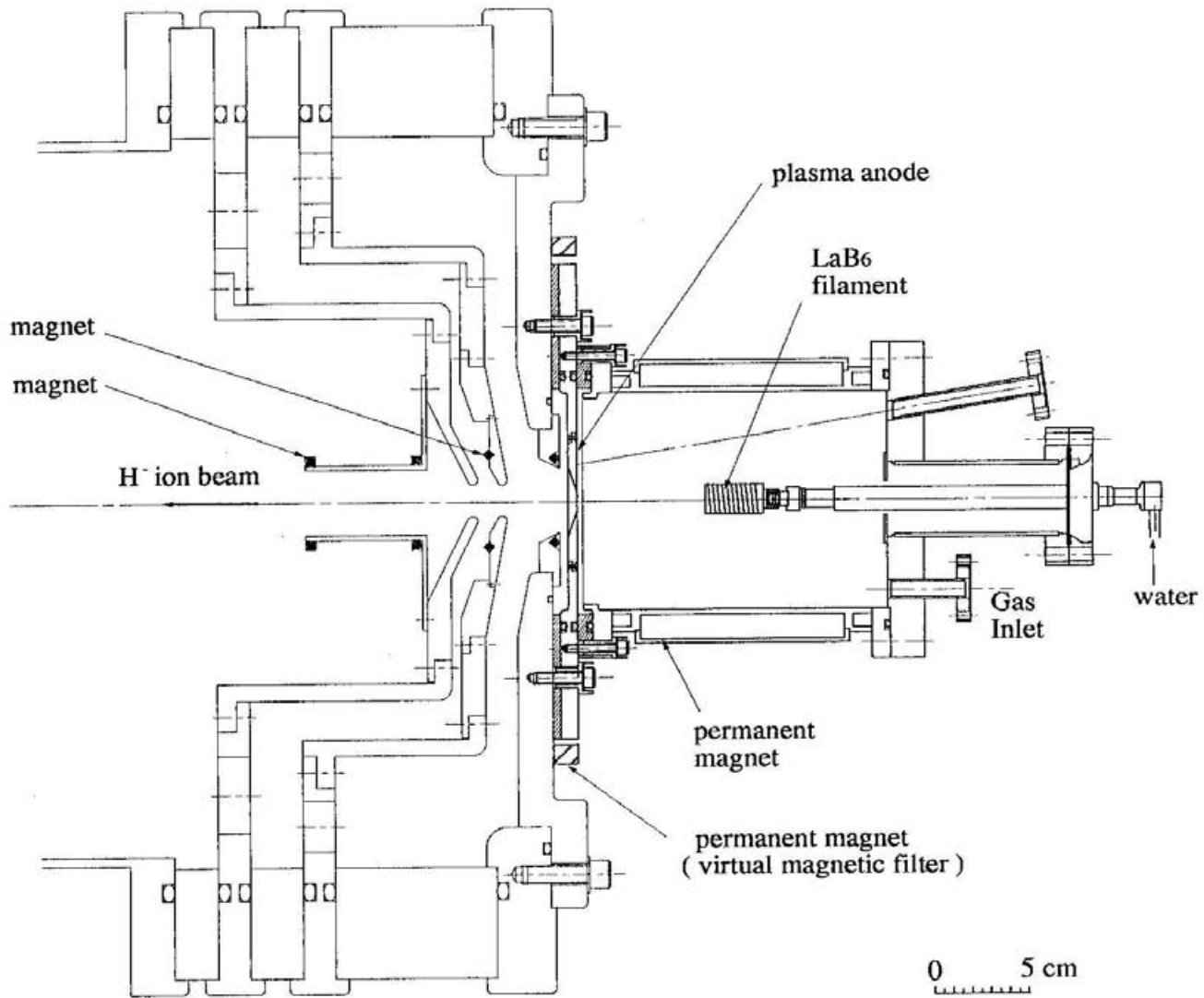


図 2 - 2 体積生成型負水素イオン源断面図

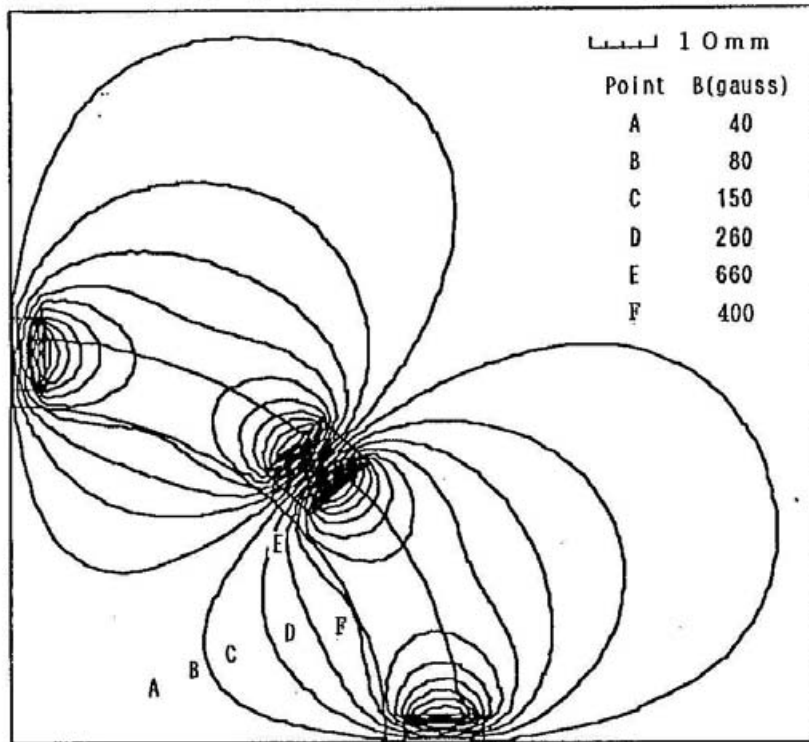


図2-3 イオン源円筒断面の磁場分布 (1/4 断面)

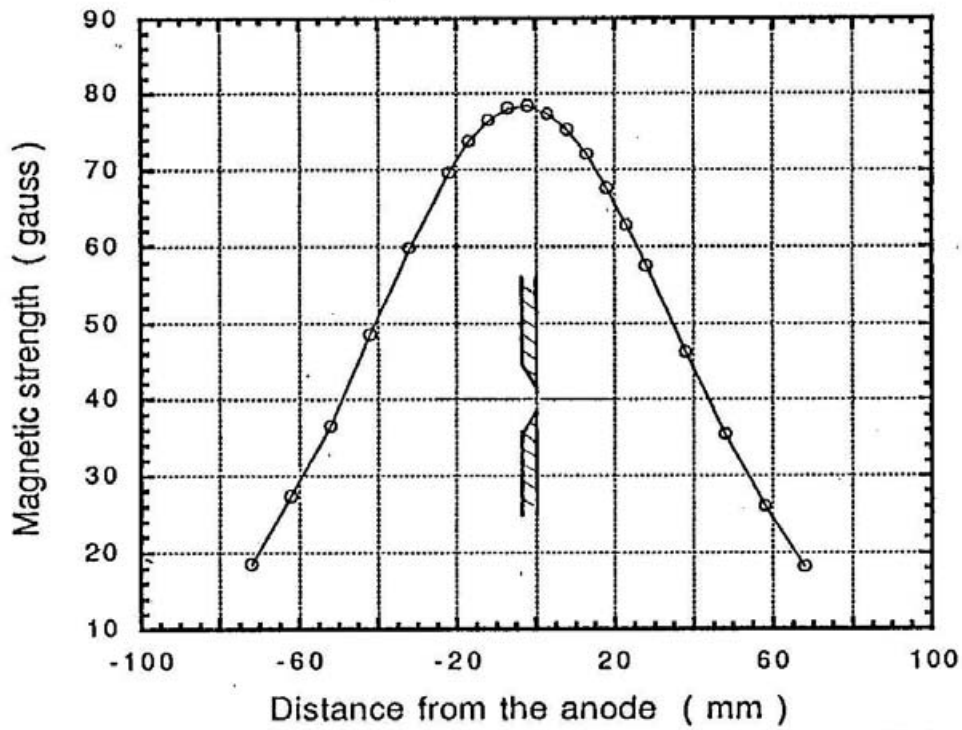


図2-4 磁気フィルターの磁場分布  
(プラズマ電極を中心としてビーム軸方向を測定)

体を取り付ける役目も果たしている。

プラズマは容器中央に配置した1個の6ホウ化ランタン ( $\text{LaB}_6$ ) のフィラメントによってアーク放電で生成している。このフィラメントはヘリカル巻き形状に  $\text{LaB}_6$  を焼結したものである。フィラメントはフィードスルーの先端に取り付けたモリブデン製のサポートに取り付けてあり、フィードスルーの内部を水冷することによって、フィラメント取付部の温度上昇を抑えている。 $\text{LaB}_6$  フィラメントのイオン源運転時の温度は約  $1400^\circ\text{C}$  である。

水素ガスは後部フランジのポートから導入した。水素ガスの導入系には、マスフローコントローラー (SEC310、PAC-S5、STEC 製) が組み込んであり、これによって流量を制御した。水素ガスは  $0\sim 50$  CCM の範囲で導入できるようにした。後部のフランジには、水素ガス導入系用のポートの他に、セシウム注入用のポートおよびセシウム注入時にプラズマ電極表面の仕事関数を測定するためのレーザー導入用のビューイングポートも取り付けてあるが、これらの詳細については次章で述べる。

イオン源を運転するための電源のブロック図は、図2-5に示す。この装置では、イオン源からビームを引き出し、加速するために、プラズマ容器側を負の高電圧にして運転した。したがって、フィラメント電源、アークパルサー、アーク電源、バイアス電源は、接地側から浮かせて、加速電圧を印加した。アークパルサーはSIT (静電誘導トランジスタ) を用いた定電流動作方式のものを使用した。このアークパルサーでは最大電流  $300\text{ A}$  まで流すことが可能である。アークパルサーはパルス幅を  $0.5\text{ msec}$ 、繰り返しを最大  $20\text{ Hz}$  で動作させた。プラズマ電極には数  $10\text{ V}$  までのバイアス電圧をかけることができるようにして、バイアス電圧によってビーム強度に変化があるか調べられるようにした。引き出し電極は2枚構造として、イオン源側の電極に数  $\text{kV}$  の負電圧をかけることにより、ビームの収束性を向上させた。また、引き出し電極の下流側にアインツェルレンズを配置してビームを収束させた。セシウムをいれない状態でイオン源を運転するときの代表的な運転モードを表2-5に示す。

イオン源から引き出したビームは、テストチェンバー内でエミッタンスとビーム電流値を測定することにより、その評価を行った。負イオン源では負イオンとともに電子も引き出される。このため、図2-2に示したように、引き出し系の途中の加速電極内とアインツェルの手前に2組の永久磁石を組み込んだ。そして、これらの磁石によって、磁気フィルター磁場と直交する方向で、各組の磁石の中心位置に対して反対称な磁場を形成して、ビームから電子だけを分離して取り除いた。負水素イオンビームは、引き出し電極から約  $1\text{ m}$  離れた位置に設置したファラディカップでビーム電流値を測定した。

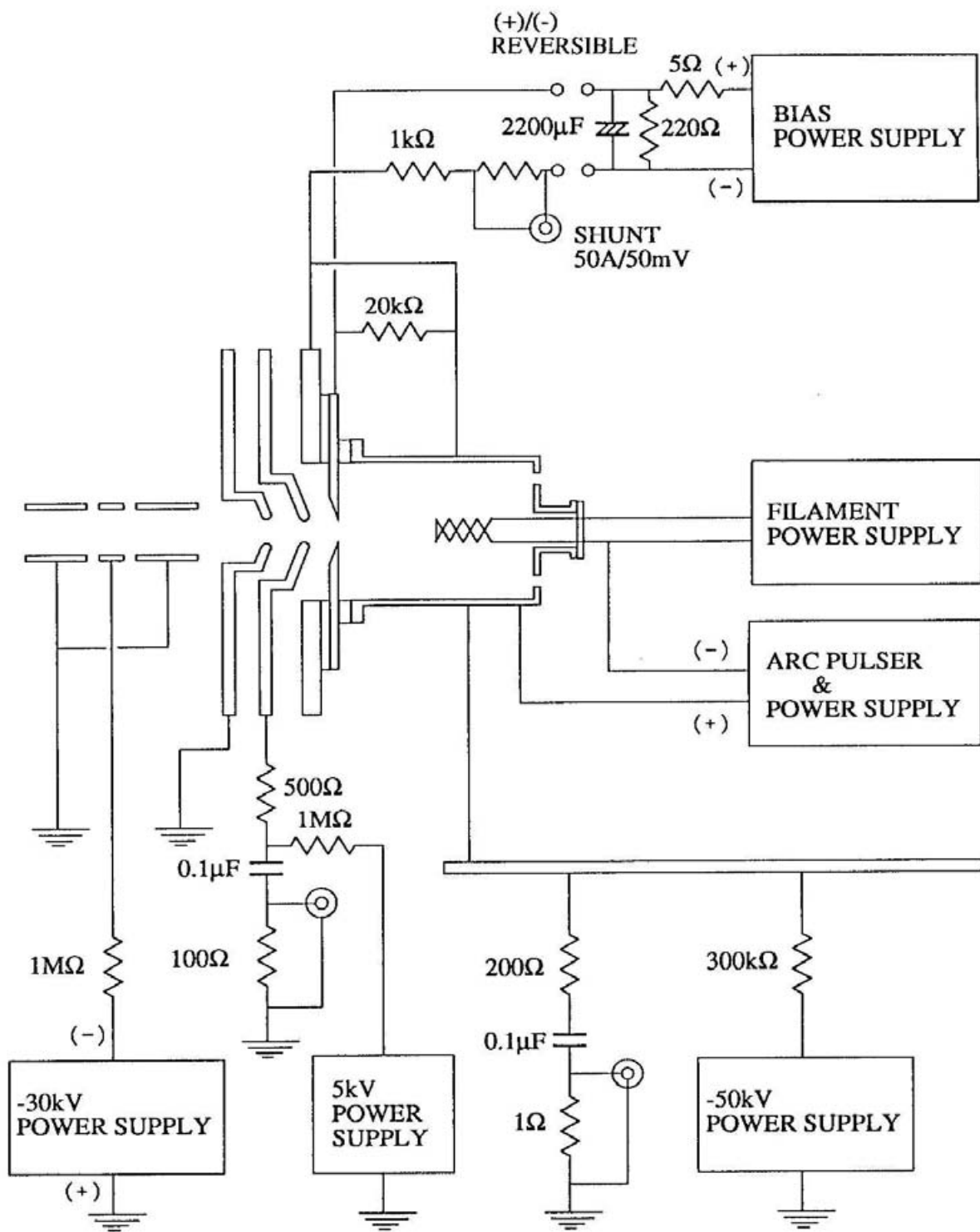


図2-5 イオン源とビーム引出し系の電源のブロック図

表2-5 セシウム注入しない状態でのイオン源運転モード

アーク電流	100 - 160 A
アーク電圧	150 - 200 V
フィラメント電流	70 A
フィラメント電圧	8 V
ビーム加速電圧	30 - 40 kV
水素ガス流量	12 - 16 CCM
プラズマ電極引き出し口径	7.5 mm
プラズマ電極バイアス電圧	-10 - -20 V

また、ビームのエミッタンスは、ファラデイカップの前にエミッタンスモニターを設置して測定した。エミッタンスモニターは、静電場中にビームを通してビームを偏向させ、特定の運動量を持った負水素イオンのみを通過させることによって運動量方向の広がりを測定する方式のもの<sup>[20]</sup>を使用した。

セシウムを注入しない状態で、このイオン源から引き出した負水素イオンビーム電流の波形と、同時に引き出されている電子電流の波形の一例を図2-6に示す。この時、ビームはパルスモード（パルス幅0.5 msec、繰り返し10 Hz）で引き出した。負水素イオンは、約3 mA引き出すことができた。一方、電子電流は400 mA近く引き出されており、プラズマ電極の近傍において多量の電子が存在していることがわかる。ビーム強度はプラズマ電極にバイアス電圧を印加してもほとんど変化がなかった。写真からわかるように、負水素イオンビームの波形は、立ち上がりのところではビーム強度が大きくなっている。これは、負水素イオンの生成量はアークパワーに比例すると考えられるので、プラズマの点火時に過渡的にアーク電圧が高くなることから説明できる。アーク電源には定電流方式の電源を使用しており、プラズマは点火後は安定な状態になって、プラズマインピーダンスも下がる。この結果、アーク電圧も下がることになり、ビーム強度も下がる。ただし、この状態はプラズマ条件（ガス圧、フィラメント温度、電子温度等）に依存する。

図2-6に示したビーム強度のときのエミッタンスの測定結果を、図2-7. a、bに示す。aは位相空間上のビーム形状であり、bは規格化エミッタンスを横軸にとり、対応する負水素イオンの占有率を縦軸に示した図である。測定の結果、90%規格化エミッタンスで $0.6\pi\cdot\text{mm}\cdot\text{mrad}$ が得られた。

縦軸

上：負水素イオン電流

1 m $\Lambda$  / div.

下：電子電流

0.2 A / div.

横軸 0.1 ms / div.

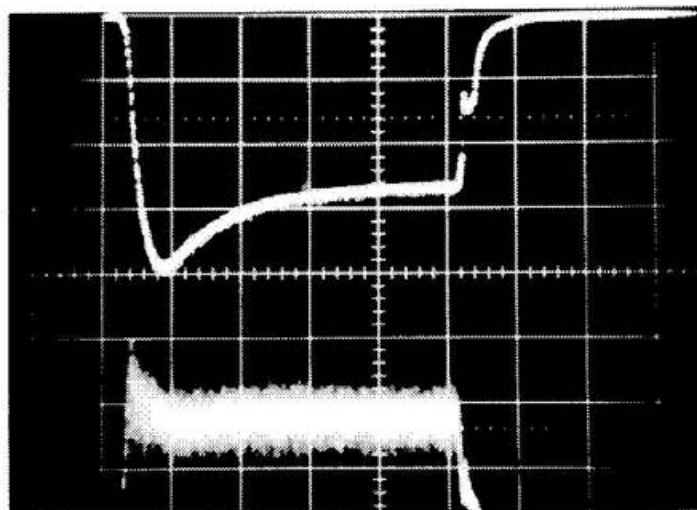


図2-6 セシウム注入しない状態で引き出したビーム電流波形

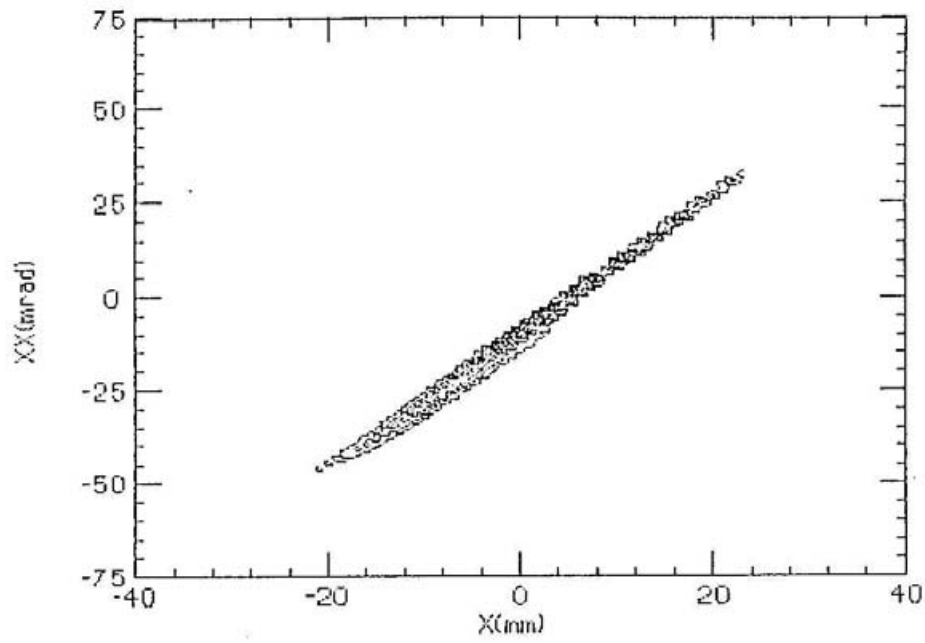


図2-7.a エミッタンス測定結果 (位相図)

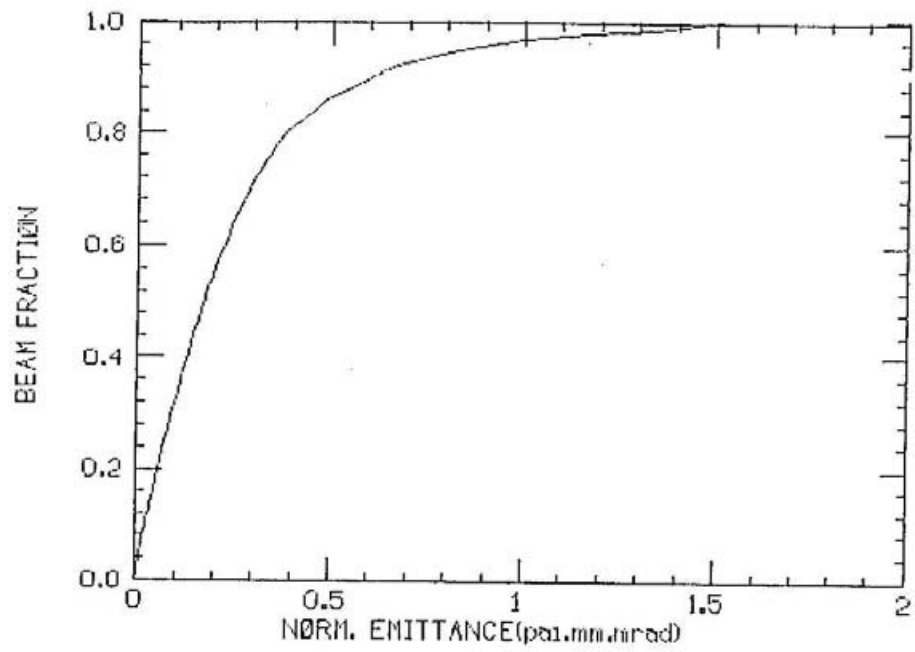


図2-7.b エミッタンス測定結果 (規格化エミッタンス)



### 第3章 体積生成型負水素イオン源へのセシウム注入実験

前章で説明した体積生成型の負水素イオン源にセシウム蒸気を注入する実験を行った。その結果、セシウムを注入することにより、ビーム強度が4倍以上増加することを確認した。そこで、本研究ではこのイオン源を使用して、セシウム効果の原因を調べる実験を行った。セシウム効果としては、セシウムがプラズマ中に拡散されることによって生じる効果と、セシウムがイオン源の内面に吸着することによって生じる効果が考えられていた。そこで、まず、どちらの効果が支配的かを調べた。実験では、プラズマ電極表面の仕事関数の変化を測定して、この面へのセシウムの吸着とビーム強度との関係を調べ、セシウム効果を解明する手がかりとした。その結果、容器内面にセシウムが吸着することによって、ビーム強度が増加していることが判明した。次に、イオン源内面のどの面に吸着したセシウムがビーム強度の増加に寄与しているかを調べ、セシウム効果の原因を特定した。

本章ではこれら一連の実験とその結果について述べる。最初に、セシウムの注入実験の方法とその結果について述べる。次に、セシウム効果として考えられる原因を挙げ、それらのうちでどれが最も支配的であるかを特定する実験とその結果について述べる。

#### 3.1 セシウム注入実験の方法

図3-1にセシウム供給系を取り付けた体積生成型負水素イオン源の断面の概形図を示す。セシウムのプラズマ容器内への注入は、プラズマ容器の後部フランジのポートの1つにセシウム供給系を取り付けて行った。セシウム供給系は、リザーバー、パイプおよびバルブから構成されている。これらの材質はすべてSUS304である。リザーバーは内径25mm、長さ120mmの円筒容器で、容器外周にヒーター線が巻き付けてある。この中にセシウムを入れ、リザーバーを200~250℃に加熱してセシウムを気化させて、イオン源中に送り出している。セシウムはガラスアンプル入り(5g)のものを使用し、アンプルを割ってリザーバー容器に入れた。セシウム蒸気を送るパイプの内径は4mmである。セシウム蒸気がバルブやパイプの中で液化・凝縮することを防ぐために、バルブとパイプにもヒーター線を巻き付け、約300℃に加熱した。実験では、リザーバー、パイプおよびバルブの温度が十分に上がった状態でバルブを開けて、セシウム蒸気をイオン源内へ注入した。セシウムは20~30分間注入した。セシウム

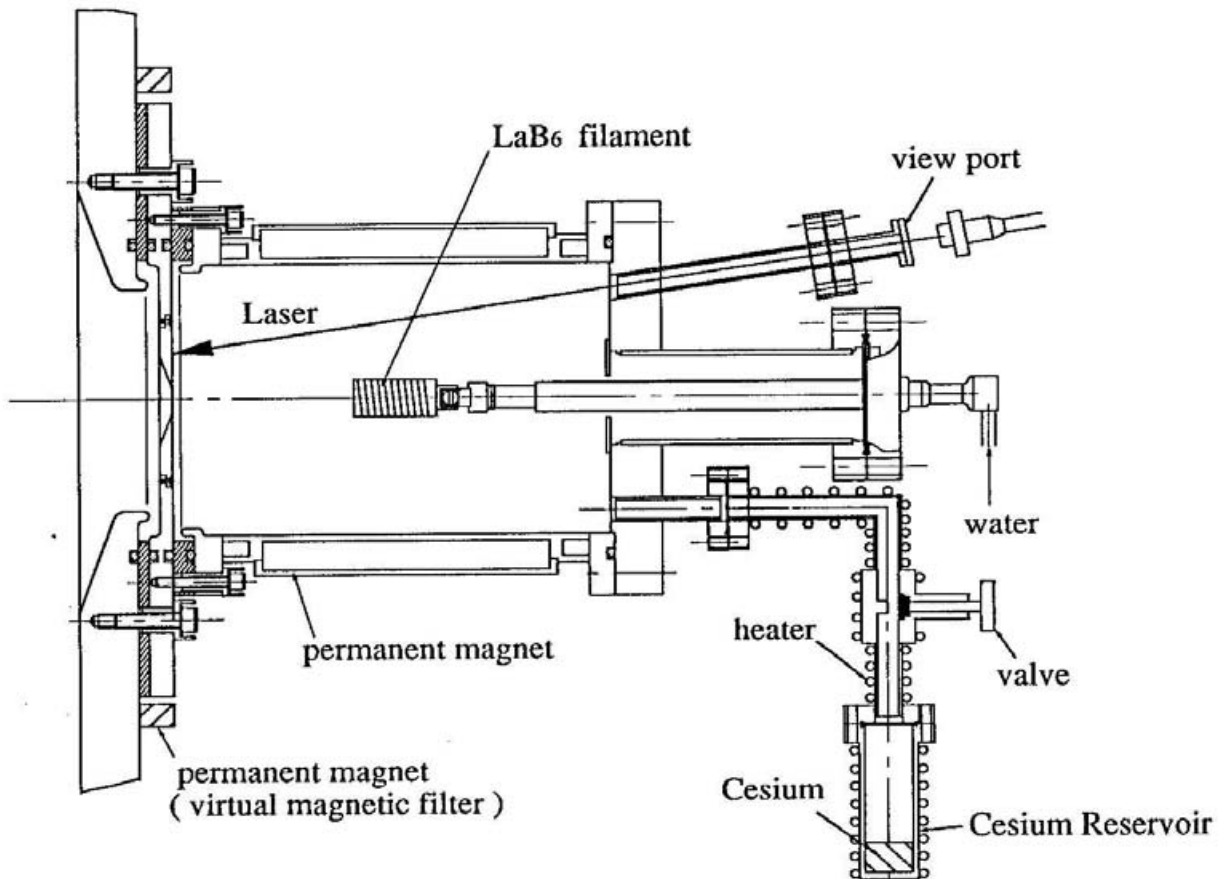


図 3-1 セシウム供給系を取り付けた体積生成型負水素イオン源の断面図

に対する供給系のコンダクタンスは、 $\sim 0.031/s$ である。リザーバー温度を $200^\circ\text{C}$ とすると、リザーバー内のセシウムの蒸気圧は $\sim 0.08\text{ Torr}$ と見積られ<sup>[21]</sup>、この場合約 $1\text{ mg/min}$ のセシウムが注入されていると見積られる。

### 3.2 セシウム注入実験結果

セシウム蒸気を注入することによって、引き出される負水素イオンビーム強度は著しく増加した。図 3-2. a と図 3-2. b に、セシウム注入前に得られたビーム電流波形とセシウム注入後に得られたビーム電流波形の 1 例を示す。セシウムを注入しない状態では、約  $3\text{ mA}$  のビーム電流を引き出していた。この状態でセシウムを注入すると、図に示すように、ビーム電流値は約  $12\text{ mA}$  になり、約 4 倍増加した。セシウム注入前と注入後では、アーク電流に若干の差異はあるが、そのことがこれだけのビーム強度の変

化をもたらすことはない。一方、電子電流値はセシウムを注入することによって減少した。例えば、3 mAの負水素イオン電流の引き出し時に約400 mA引き出されていた電子電流が、負水素イオン電流が12 mAに増加した時には約100 mAに減少した。

図3-3は引き出し得た最大の負水素イオン電流の波形である。アーク条件を変えて引き出し得る最大のビーム強度を測定した結果、約20 mAのビーム電流値が得られた。

セシウム注入時のビームエミッタンスの変化は、代表的な測定結果を図3-4. a~cに示す。図は、セシウム注入前、セシウム注入後で6.5 mAの負水素イオン電流を引き出した時、セシウム注入後で12 mAの負水素イオン電流を引き出した時の3つの場合にエミッタンスを測定した結果である。図からわかるように、セシウム注入後負水素イオン電流値が6.5 mAの状態では、エミッタンスはセシウム注入前のエミッタンスとほとんど同じである。一方、負水素イオン電流値が12 mAの時に測定した結果ではエミッタンスは増加している。これは電流密度が増大したために空間電荷力によってエミッタンスが広がったためと考えられる。90%規格化エミッタンスをとると、12 mAの負水素イオン電流値の時で $1\pi\cdot\text{mm}\cdot\text{mrad}$ である。

バルブを開けてセシウム蒸気を徐々に注入していった時のビーム電流値の変化には、以下のような特徴がある。

- (1) セシウムを入れ始めて10分ぐらいはビーム電流値に変化は見られない。  
その後、急激にビーム電流値が増加する。
- (2) バルブを閉じてセシウムの注入を中止した後でも、ビーム電流は増加したままで長時間引き出せる。例えば、パルス幅0.5 msec、繰り返し10 Hzのパルス運転でビームを引き出すと10時間ぐらいは引き出せる。
- (3) イオン源の運転を停止してプラズマ容器を真空引きしたまま保持し、翌日再び運転しても、ビーム強度が増加した状態でビームを引き出すことが可能である。

この結果からわかるように、約20分間のセシウム注入で長時間増強したビームを引き出すことが可能である。このため、現在、加速器の負イオン源として使用されている表面生成型の負水素イオン源のようにセシウムを連続供給する必要がない。したがって、表面生成型のイオン源に比べてはるかに少ないセシウム消費量で高強度の負水素イオンビームを引き出すことができる可能性がある。また、下流側の加速系へのセシウムによる汚染を大幅に低減することができる。

アーク電圧 160 V  
アーク電流 145 A  
縦軸 1 mA/div.  
横軸 0.1 ms/div.

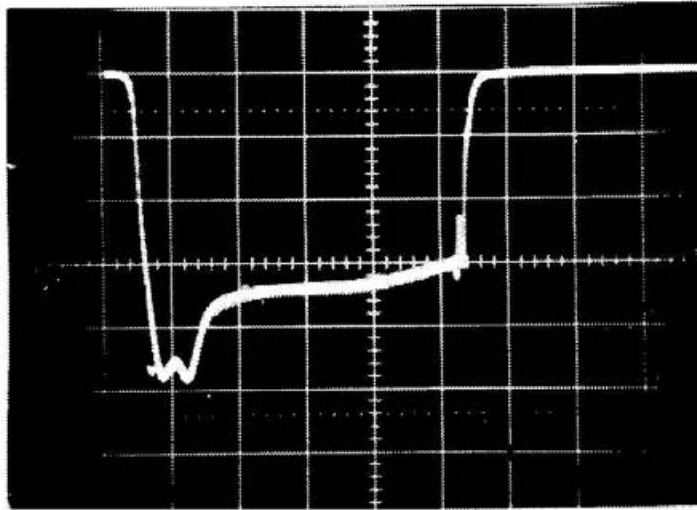


図3-2.a セシウム注入前の負水素イオンビーム電流波形

アーク電圧 160 V  
アーク電流 130 A  
縦軸 2 mA/div.  
横軸 0.1 ms/div.

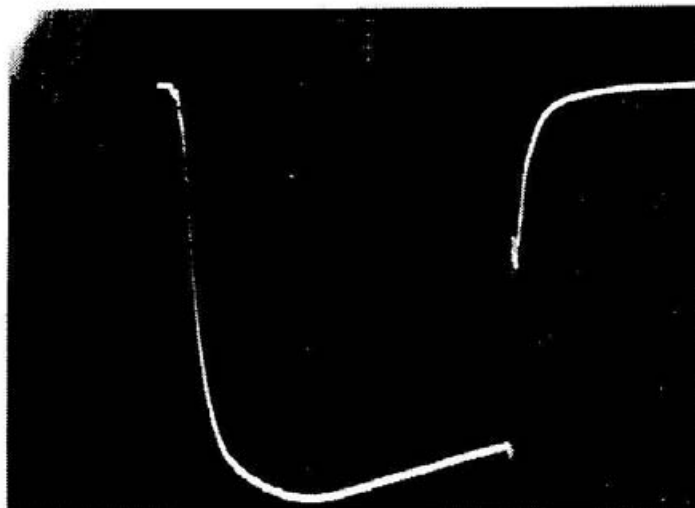


図3-2.b セシウム注入後の負水素イオンビーム電流波形

アーク電圧 100 V  
アーク電流 220 A  
縦軸 5 mA/div.  
横軸 0.1 ms/div.

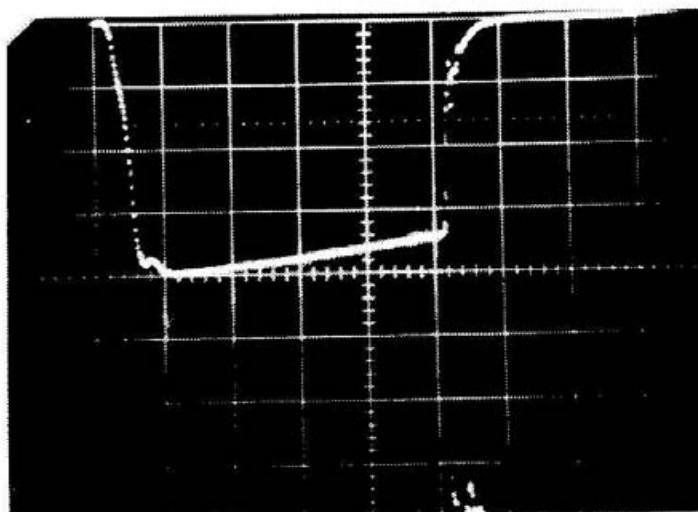


図3-3 引き出した最大の負水素イオンビーム電流の波形

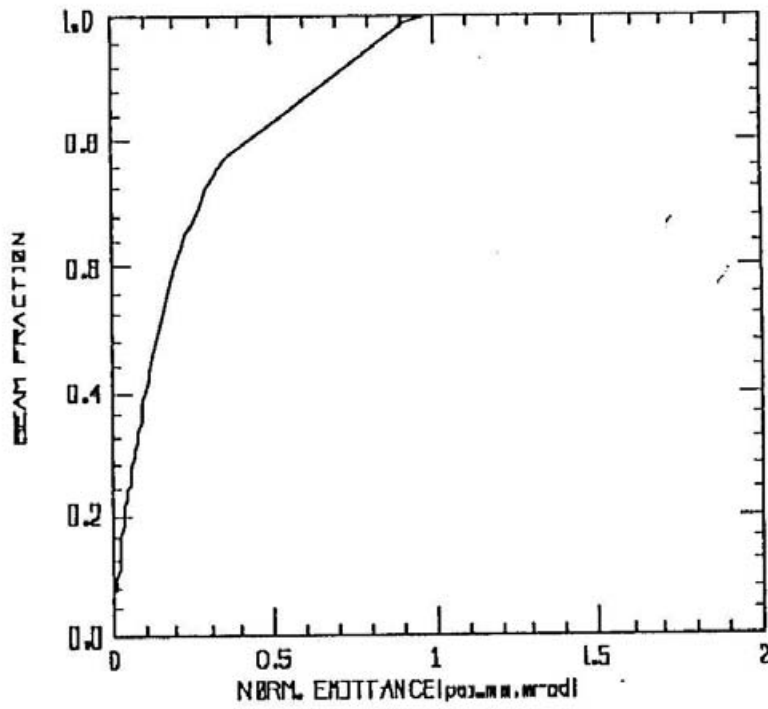


図3-4.a セシウム注入前の規格化エミッタンス  
(負水素イオン電流：2 mA)

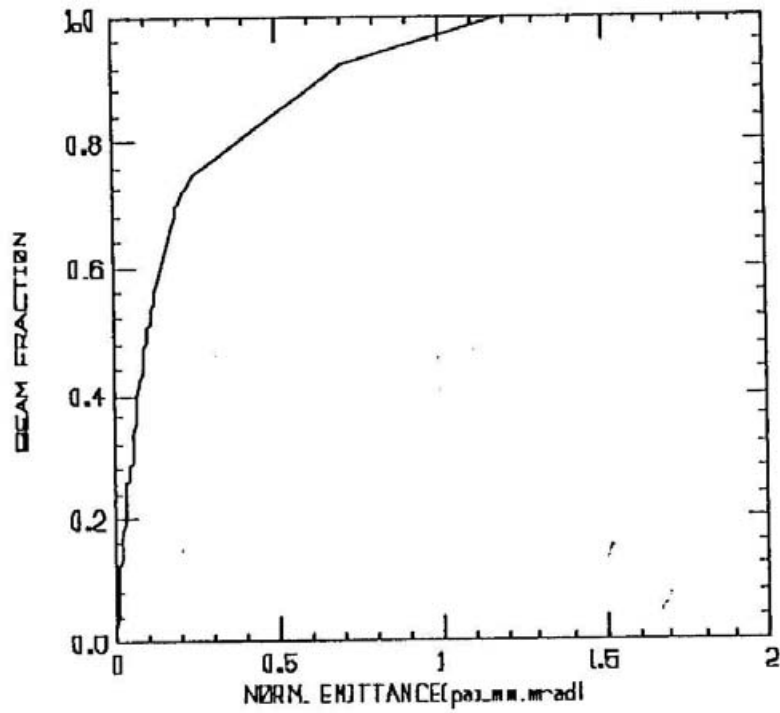


図3-4.b セシウム注入後の規格化エミッタンス  
(負水素イオン電流：6.5 mA)

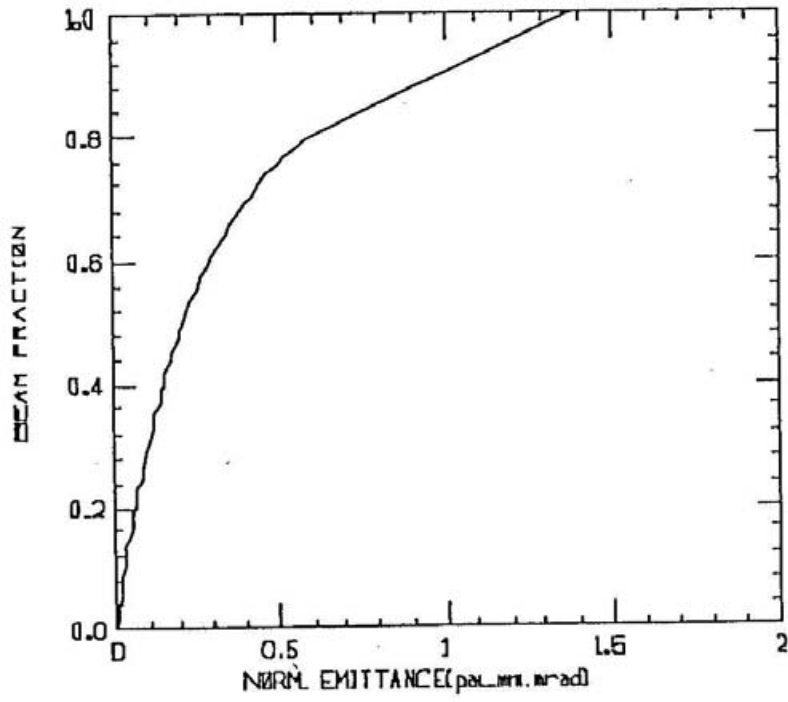


図3-4.c セシウム注入後の規格化エミッタンス  
(負水素イオン電流：16mA)

### 3.3 セシウム効果の原因を特定する実験

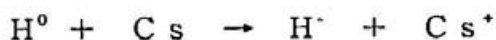
セシウムを注入したときに負水素イオンビーム強度が増加する理由として、次のようなことが考えられる。

#### (1) 低い温度の電子の増加

セシウムを注入することにより、プラズマ中の電子がセシウムと衝突して冷却される。このため、低い温度の電子が増加して、励起水素分子と電子の解離性付着反応の断面積が増加する。

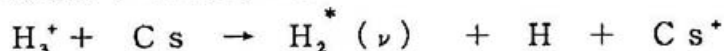
#### (2) 水素イオン、水素原子とセシウムとの衝突による負水素イオン生成

セシウムは電離電圧が低いため、水素イオンや水素原子に対して電子を与えやすい。したがって、水素イオンや水素原子とセシウムとの衝突によって、プラズマ中で負水素イオンが生成される。



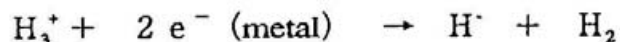
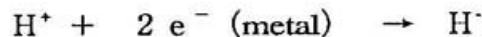
#### (3) 水素イオンとセシウムとの衝突による励起水素分子の生成

プラズマ中には多量の $\text{H}_3^+$ イオンが存在する。これらがセシウムと衝突して励起水素分子を生成する。



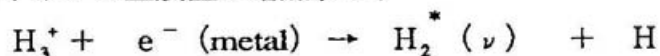
#### (4) 容器内表面における負水素イオン生成

セシウムがイオン源のプラズマ容器の内面に吸着することにより、この表面の仕事関数が低下する。プラズマ中には多量の水素原子および水素イオンが存在しており、これらが仕事関数の低下した金属表面に衝突する際に金属から飛び出してくる電子を捕獲して負水素イオンになる。



#### (5) 容器内表面における励起水素分子の生成

プラズマ中の $\text{H}_3^+$ イオンは仕事関数の低下した金属表面で金属の自由電子を捕獲して励起水素分子を生成する。その結果、励起水素分子の密度が増加して負水素イオンの生成量が増加する。





(1) から (3) までの項目はセシウムがプラズマ中に拡散することによって生じる効果である。(4) と (5) はセシウムが金属表面に吸着することによって生じる効果である。また、(4) は負水素イオンの表面生成過程であるのに対して、それ以外は体積生成過程である。そこで、上記の (1) ~ (5) のうち、どれが最も支配的であるのか、あるいは上記以外の理由があるのかを調べる実験を行った。

前節のセシウム注入実験の結果から、(1) ~ (3) のプラズマ中におけるセシウムの効果は小さいと考えられる。それは、以下のような理由による。すなわち、セシウムを注入してもイオン源のプラズマ特性は大きく変化しない。また、セシウムを注入してからビーム強度が増加するまでに時間を要する。プラズマ中で生じる効果であれば、もっと早くビーム強度の変化が生じて良いはずである。さらに、セシウムの注入を止めてもビーム強度が増加したままである。セシウムの注入を止めた時には、セシウム注入時と比較すると、プラズマ中のセシウム原子の密度は低いと考えられる。したがって、プラズマ中のセシウム密度変化と負水素イオン密度変化の間には相関関係が見られず、(1) ~ (3) に述べた効果が支配的であるとは考えにくい。容器内面にセシウムが吸着することによってビーム強度の増加がもたらされている可能性の方が高いと考えられる。

そこで、プラズマ中に拡散されることによって生じる効果か、表面に吸着することによって生じる効果かを明らかにするために、プラズマ電極の仕事関数の変化を測定して、イオン源の内面へのセシウムの吸着がビーム強度の増加に関与しているか否かを調べた。

### 3.3.1 仕事関数の測定

仕事関数の測定には、セシウム吸着面にレーザー光を照射して、表面から放出される光電子の電流値を測定することにより仕事関数の変化を求める方法を採用した<sup>[22][23]</sup>。図3-5に測定方法の概要を示す。イオン源には、図3-1に示したように、プラズマ容器の後部のポートにICF34のフランジを介して、サファイアガラス製の覗き窓が取り付けられている。この覗き窓はプラズマ電極の引き出し孔の近傍を望むような角度に取り付けられており、この窓からレーザー光をプラズマ電極表面に照射することができる。この時、プラズマ電極表面の仕事関数によって、表面から放出される電子の量に変化する。したがって、プラズマ電極にバイアス電圧を印加してプラズマ電極に流れる電流値を測定すれば、仕事関数の変化を測定することができる。仕事関数と放出される光電子の電流値の関係は次式で与えられる<sup>[22]</sup>。

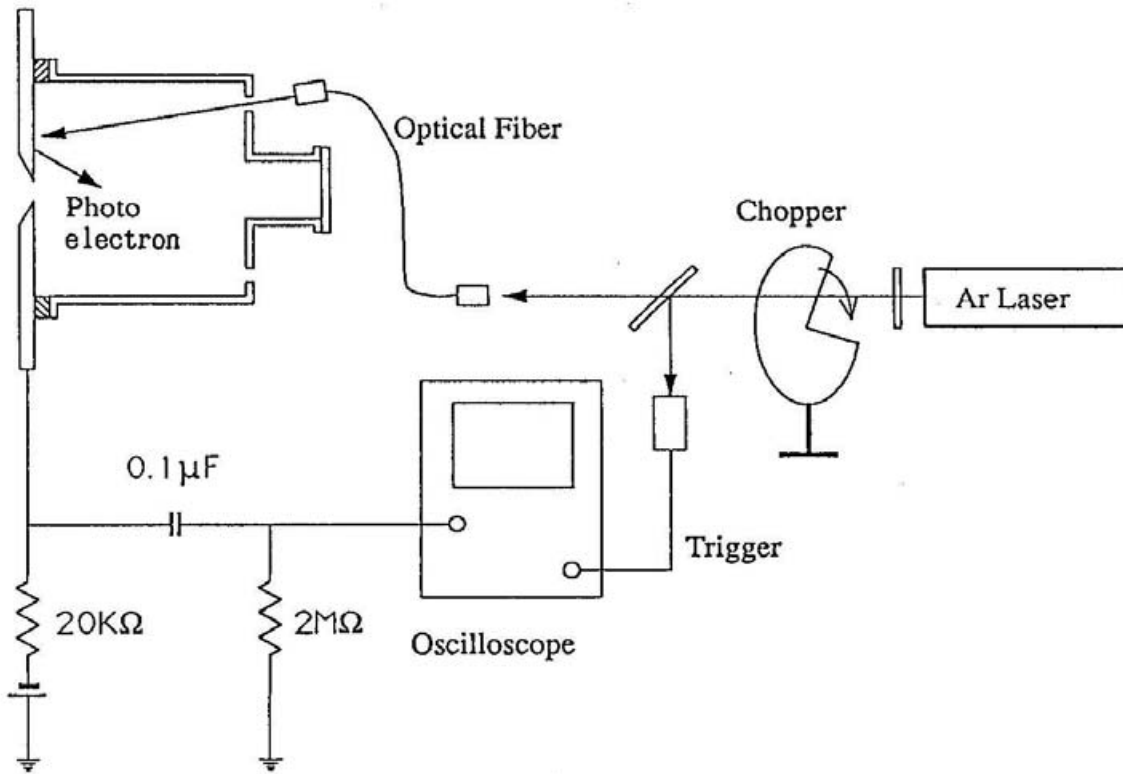


図3-5 仕事関数の測定系のブロック図

$$\begin{aligned}
 Y &= C (h\nu - \phi)^2 & h\nu > \phi \\
 Y &= 0 & h\nu < \phi
 \end{aligned}
 \tag{3.1}$$

ここで、 $\phi$  は仕事関数であり、 $\nu$  はレーザーの周波数である。また、 $C$  は比例定数である。この式の導出については Appendix A に示す。

実験では、レーザーとしてアルゴンレーザー（波長 514.5 nm）を使用した。レーザー光はレーザー源から光ファイバー線で伝送して、覗き窓からプラズマ電極に照射した。この波長では（3.1）式からわかるように、仕事関数が 2.41 eV 以下になると光電子が真空中に放出される。したがって、仕事関数は 2.41 eV 以下の範囲で測定することが可能である。ただし、この測定方法では、（3.1）式において比例定数を定めないと仕事関数の絶対値を求めることができない。そこで、本研究ではセシウムが単原子層以上金属表面に吸着した状態における仕事関数を 2.1 eV とした<sup>[23]</sup>。そして、この時の光電子電流値をもとに比例定数を求めた。この詳細については、Appendix A に示す。

レーザー光は、チョッパーによってパルスの的にプラズマ電極表面に照射し、レーザー照射時の光電子電流を矩形波としてオシロスコープで測定できるようにした。レーザー光は80mWのパワーで照射した。また、プラズマ電極のバイアス電圧は、-30Vを印加した。

セシウムを注入した時に、この方法で測定した光電子電流値の時間的変化を図3-6に示す。横軸はバルブを開けてセシウムを注入し始めた時を0とした時間である。図からわかるように、セシウムを注入して約9分後に光電子電流が観測できた。プラズマ電極表面に徐々にセシウムが吸着して、この時点で仕事関数値が2.41eV以下に下がったと見なせる。その後、さらにセシウムを注入するにつれて仕事関数も低下し、約20分後に光電子電流値は飽和状態になった。この状態はセシウムが単原子層以上表面に吸着した状態であると考えられる。この状態における光電子電流の波形の様子を図3-7.aに示す。また、比較のため、図3-7.bにセシウムを注入する以前に測定した光電子電流の波形も示す。

セシウムを金属表面に吸着させていく時の表面の仕事関数は、セシウムの単原子層が形成されている状態よりも、ほぼ半単原子層が形成されている状態で最小になることが

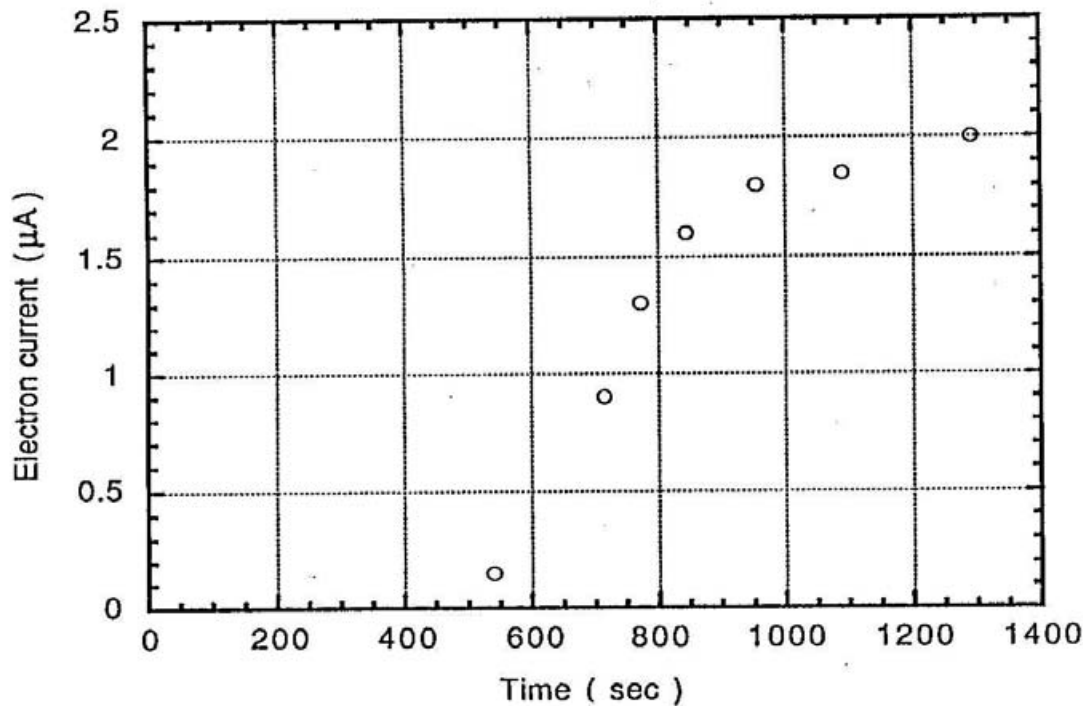


図3-6 セシウム注入時のプラズマ電極表面の仕事関数の時間的変化

縦軸  $0.5 \mu\text{A} / \text{div.}$   
横軸  $5 \text{ms} / \text{div.}$

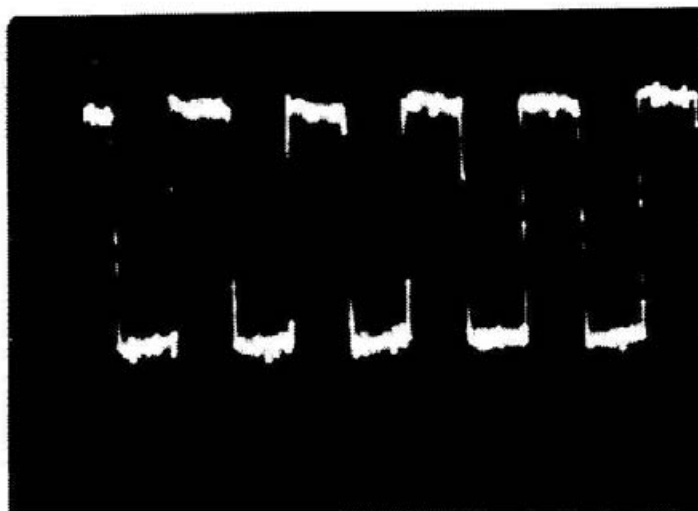


図3-7.a セシウム吸着時の光電子電流波形

縦軸  $0.5 \mu\text{A} / \text{div.}$   
横軸  $5 \text{ms} / \text{div.}$



図3-7.b セシウム吸着前の光電子電流波形

知られている<sup>[24]</sup>。しかしながら、本実験では、図3-6に示したように仕事関数が最小となるピークは観測されなかった。この理由は、プラズマ電極表面へのセシウムの吸着が均一でないためであると考えられる。即ち、表面に一様にセシウムの半単原子層が形成されず、部分的に吸着量が異なる状態で吸着が行われていたためであると考えられる。

光電子電流値が飽和状態になった時点で、セシウムの注入を中止してビームを引き出した結果、ビーム強度は約12mAに増加していた。さらに、セシウム注入を中止した状態で引き続きイオン源を運転したが、増加した状態のビーム強度で負水素イオンを引き出すことができた。

以上の実験結果から明らかなように、前節で述べたセシウム注入時に引き出される負水素イオンのビーム強度の増加の時間的変化とプラズマ電極の表面の仕事関数の時間的変化が一致する。したがって、セシウム効果は、プラズマ容器内面にセシウムが吸着することによって、プラズマ容器内面の仕事関数が低下して引き起こされていると結論づけることができる。この結果、セシウムの効果として前述した5項目のうち、(4)の負水素イオンの表面生成と(5)の励起水素分子の生成のどちらかが、あるいは両者が主因であることがわかった。

### 3.3.2 セシウムのスパッタリング実験

イオン源の内面はすべて金属であり、水冷却されている。したがって、セシウムはイオン源の内面の全域に吸着する。この結果、すべての金属表面の仕事関数が低下する。このことは、イオン源を外して内面を観察した結果からも明らかである。しかしながら、全表面に吸着したセシウムが負水素イオンビーム強度の増加に寄与しているか否かは明らかではない。

(4)の表面生成による負水素イオン生成が主因であれば、プラズマ電極表面に吸着したセシウムのみがビーム強度の増加に寄与する。なぜならば、プラズマ電極表面以外で生成された負水素イオンは引き出し孔に到達するまでに、表2-4に示したように、プラズマ中で $H^+$ イオンや高い温度の電子と衝突して消滅してしまう確率が高いからである。したがって、この場合はプラズマ電極表面で生成された負水素イオンのみが引き出されると考えてよい。

一方、(5)の励起水素分子が表面で生成されることが主因であれば、全表面に吸着したセシウムがビーム強度の増加に寄与する。なぜならば、この効果はプラズマ中の励

起水素分子の密度を増加させるものであるため、広範囲にセシウムが吸着する方が密度の増加も大きく、ビーム強度の増加も大きいと考えられるからである。したがって、どの表面に吸着したセシウムがビーム強度の増加をもたらすかを調べることは、(4)と(5)のセシウム効果のうち、どちらが主であるかということの間接的に明らかにする。

そこで、次にどの表面にセシウムが吸着することによってビーム強度が増加するのかを実験から求めた。実験では、プラズマ電極表面とそれ以外の表面に分けて、それぞれの表面のセシウムの吸着の有無によりビーム強度がどう変化するかを測定した。図3-8に実験の方法の概略を示す。まず、体積生成型の負水素イオン源にセシウムを注入してビームを引き出した。この時、プラズマ電極の仕事関数が低下していることと、ビーム強度が増加していることを確認した。次に、図3-8に示すように、注入ガスを水素からアルゴンに換えて、アルゴンプラズマを生成して、プラズマ電極にのみ-500Vの電圧を印加した。これにより、アルゴンプラズマはプラズマ電極だけをスパッタし、プラズマ電極表面のセシウムのみを除去する。他方、プラズマ電極以外の金属表面はスパッタされないためにセシウムが吸着したままである。このことは、実験後、イオン源を分解して確認している。そして、スパッタ後に再び負水素イオンビームを引き出してその強度を測定することにより、プラズマ電極のみの仕事関数の低下がビーム強度の増加に結びついているか否かを調査した。

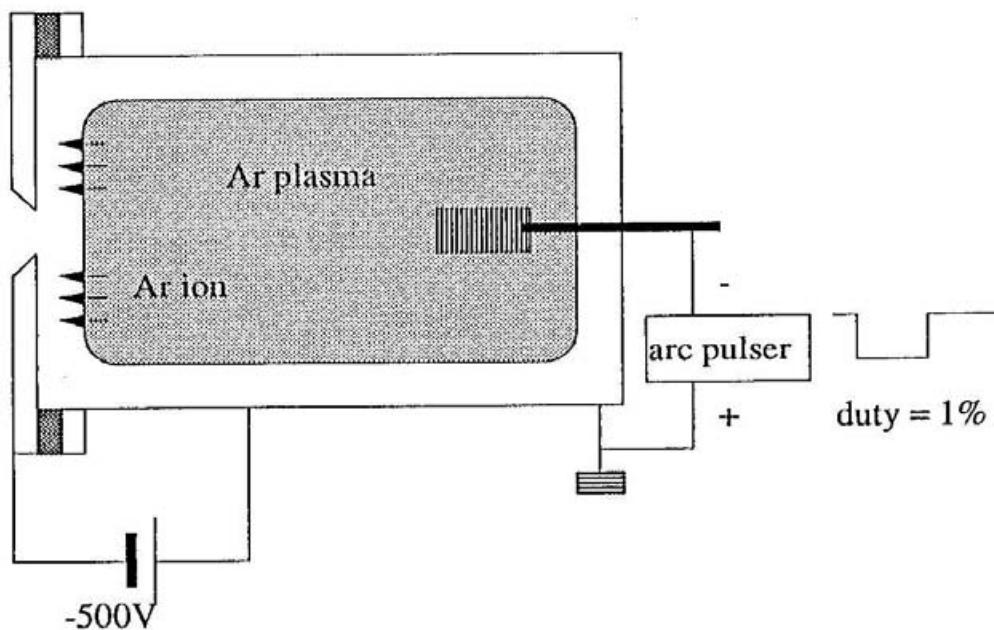


図3-8 アルゴンプラズマによるプラズマ電極表面のセシウム除去方法の模式図

この実験の結果を図3-9.aとbに示す。aはプラズマ電極を含む全面にセシウムが吸着している状態のビーム波形と光電子電流の波形であり、bはアルゴンガスでプラズマ電極表面のセシウムを除去した後のビーム波形と光電子電流の波形である。この結果から明らかなように、プラズマ電極に吸着したセシウムを取り除くことにより、ビーム強度は図3-2.aに示したようなセシウム注入前の状態になった。したがって、プラズマ電極のみに吸着したセシウムがビーム強度の増加に寄与していることがわかった。

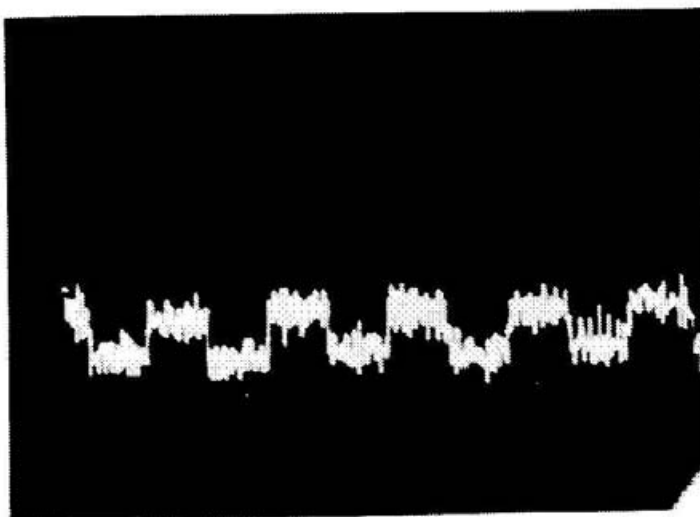
この結果から、(5)の効果はほとんど寄与していないと言える。プラズマ容器の円筒部と後部フランジの内面を合わせた表面積は、プラズマ電極の表面積と比較するとはるかに大きい。このため、(5)の効果が支配的であるならば、プラズマ電極のセシウムがなくなっても、表面で生成される励起水素分子の減少は少ない。プラズマ電極のセシウムがなくなることによって、ビーム強度がセシウム注入前の状態に戻ることはない。したがって、セシウム効果は、(4)の表面生成による効果によって、直接負水素イオンが生成されてビーム強度が増加していることにより生じていると結論づけられる。



光電子電流波形

縦軸  $0.5 \mu\text{A} / \text{div.}$

横軸  $5 \text{ ms} / \text{div.}$



ビーム電流波形

縦軸

上：負水素イオン電流

$2 \text{ mA} / \text{div.}$

下：電子電流

$0.1 \text{ A} / \text{div.}$

横軸  $0.1 \text{ ms} / \text{div.}$

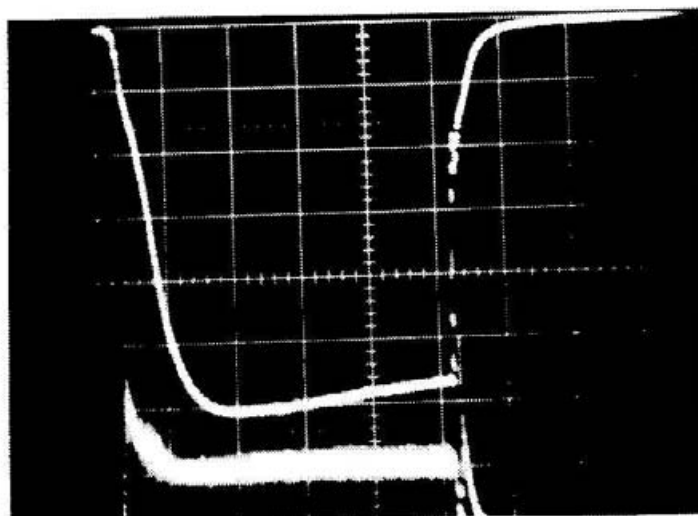


図3-9.a アルゴンプラズマによるスパッタリング前の  
光電子電流波形（上）とビーム電流波形（下）



光電子電流波形

縦軸 0.5  $\mu\text{A}$  / div.

横軸 5 ms / div.



ビーム電流波形

縦軸

上：負水素イオン電流

1 mA / div.

下：電子電流

0.2 A / div.

横軸 0.1 ms / div.

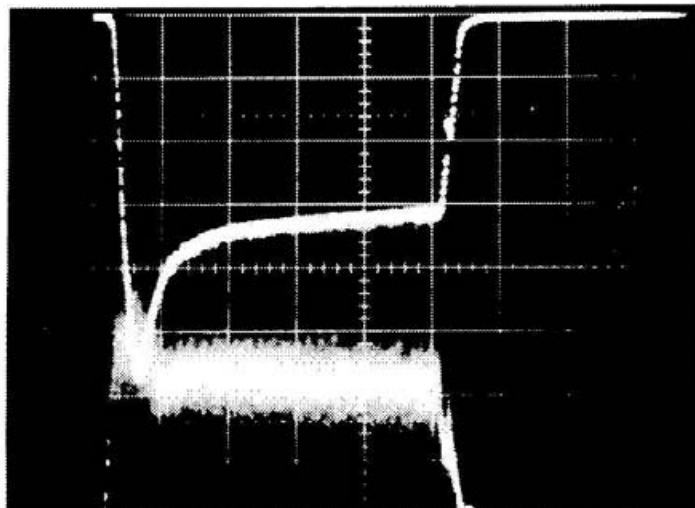


図3-9.b アルゴンプラズマによるスパッタリング後の  
光電子電流波形（上）とビーム電流波形（下）

## 第4章 負水素イオンの表面生成

金属表面に接近した原子（イオン）は、金属表面との相互作用によって金属中から放出される電子を捕獲することにより、負イオンとなる。負イオン生成を理論的に理解するには、原子が表面から離脱していく行程に沿って、原子-表面間の相互作用について、時間に依存するシュレーディンガー方程式を解かなければならない。

負イオンの生成の理論的解析は、これまでいくつか行われている。Rasserらは、semi-classical モデルを提案し、金属から原子への電子の遷移確率を原子の表面からの距離の関数として求めた。そして、表面からの距離に対する負イオンの存在確率を求めて、古典的マスター方程式によって時間発展させて、負イオン生成確率を与える式を導いた<sup>[25]</sup>。より厳密な方法として、Blandin, Nourtierらは、量子力学的モデルを提案し、原子と金属表面との相互作用を時間に依存する摂動として解析し、波動関数の振幅の時間発展を計算してイオン化確率の一般式を誘導した<sup>[26]</sup>。この量子力学的モデルに基づく生成効率については、Brako<sup>[27]</sup>、Nørskov<sup>[28]</sup>らによっても、より詳しく研究されている。

これらのモデルに基づく理論値は、水素原子に対しては表面から離脱する原子のエネルギーが2.5 eV以上の領域ではほぼ一致している<sup>[25]</sup>。また、酸素の負イオン生成実験によって、高いエネルギー領域では理論値と実験値が合うことが確認されている<sup>[29]</sup>。しかし、低エネルギー領域では2つの理論値には開きがあり、semi-classical モデルのほうが生成効率を大きめに見積ると考えられている。ただし、量子力学的モデルによる理論値が低いエネルギー領域で実験値と一致するかどうかは明らかにはされていない。

本章では、Blandin, Nourtierらによって提案された量子力学的モデルに基づいて負水素イオン生成効率式を導く。まず、4.1節で金属表面における原子（イオン）の負イオン生成機構について説明し、金属表面と原子の間に働く相互作用について具体的に述べる。そして、4.2節でグリーン関数の摂動展開によって、表面における負イオン化の一般式を与え、さらに低エネルギーで表面から散乱する原子に対する負イオン生成効率を定式化する。

## 4.1 金属表面における負水素イオン生成機構

金属表面における負イオンの生成機構を図4-1に模式的に示す。原子が金属表面から離れた位置にある場合は、図中の位置Aに示すように原子と金属表面の間には相互作用は生じない。したがって、原子の価電子のエネルギー準位は電子親和力で定義される準位にある。この状態は定常状態であり、原子の価電子のエネルギー準位は金属中の電子のフェルミ準位に比べるとエネルギー的に高い位置にある。また、金属中の電子は仕事関数として定義されるポテンシャル障壁が表面に存在するため、金属表面から真空中に飛び出すことはできない。

原子が金属表面に対して接近した位置にあると、両者の間に鏡像によるクーロンポテンシャルによって相互作用が生じる。この相互作用は、原子の価電子のエネルギー準位のシフトと、準位幅が有限幅に広げられる準位幅の拡大として現われる。この準位シフトと準位幅の拡大によって、原子の価電子のエネルギー準位はフェルミ準位に近づく。この結果、原子の価電子と金属のフェルミ電子との間のポテンシャル障壁が小さくなり、トンネル効果により、両者の間で電子の移行が起こりやすくなる。

金属の仕事関数が大きい場合には、準位シフトと準位幅の拡大が生じた状態でも、原子の価電子のエネルギー準位はフェルミ準位よりも高い。このため、金属と原子の間の電子の遷移確率は極めて小さい。しかし、仕事関数が小さい金属や、セシウム等の仕事関数の小さい金属の原子を表面に吸着させて表面の仕事関数を下げた状態の金属では、金属中の電子のエネルギー準位は、準位シフトと準位幅の拡大を起こした原子の価電子のエネルギー準位に近づく。その結果、電子の遷移確率が大きくなって負イオンが生成される確率も大きくなる。

金属表面に熱運動速度の原子が当たって散乱する場合、原子は表面上に一時吸着した後には表面から離脱する。水素原子の場合、室温の金属表面上における平均吸着時間は、 $\sim 10^{-11}$  s 程度である。この時間は金属中の電子が表面に吸着した原子に移る時の遷移時間（例えばセシウム表面に吸着した水素原子では $\sim 10^{-15}$  s 以下）に比べると十分に長い。このため、吸着状態では電子は金属と原子の間に遷移を繰り返している。吸着原子は、いわば、負イオンと中性原子の混合状態にあると考えられる。したがって、表面上にある原子に遷移した金属電子の状態密度は、原子の表面への入射速度には依存しないと考えてよい。

原子（負イオンと中性原子が混合状態になっている原子）が表面から離れていくと、表面からの距離に応じて金属内の電子と原子の間の遷移確率が変化し、負イオンの電子

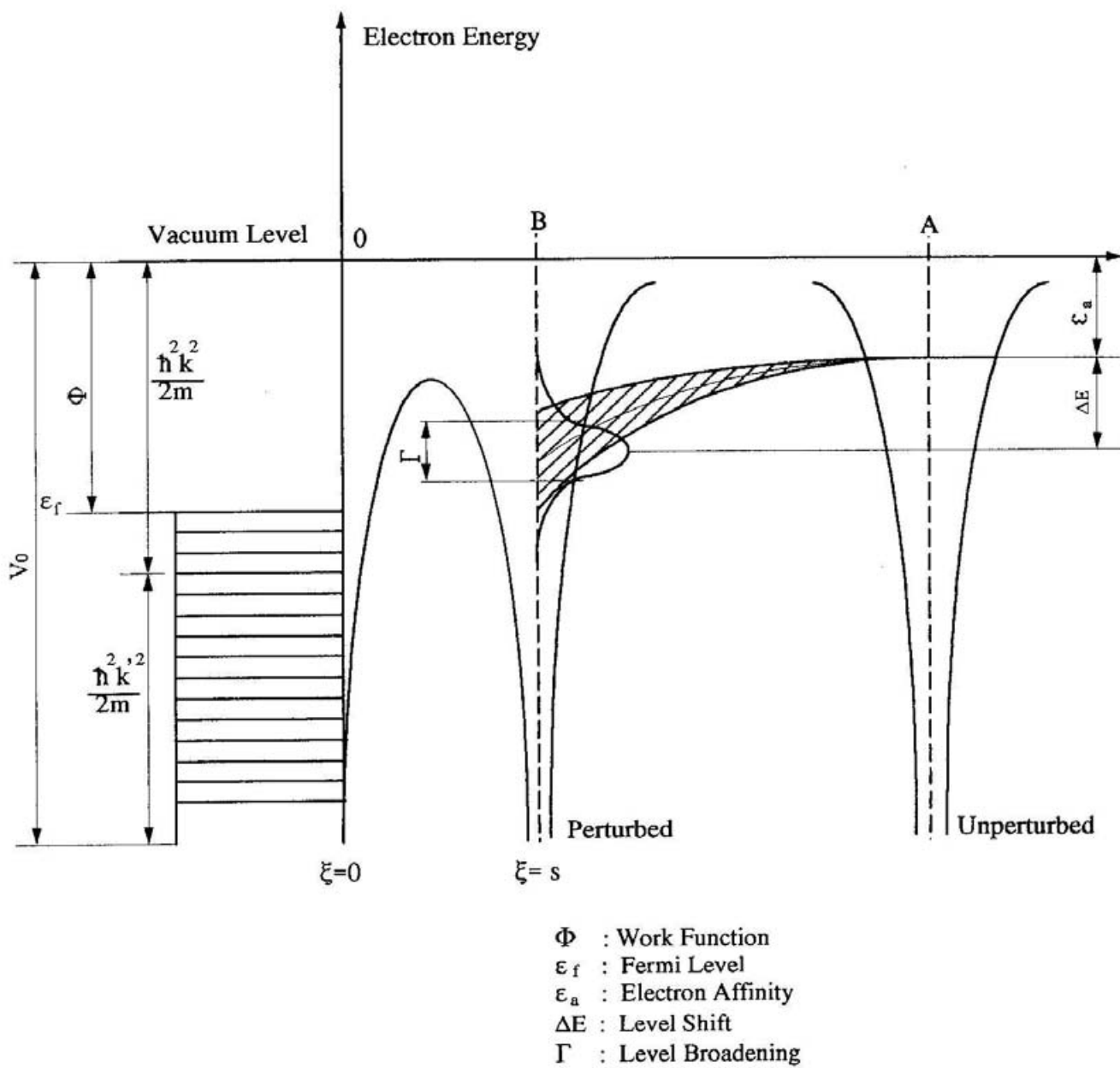


図 4 - 1 金属表面と原子との相互作用の模式図

の状態密度が変化する。負イオンとしての生存確率は、原子が表面から離れていく行程に沿って、この状態密度の変化を求めることによって得られる。すなわち、表面からのある位置において、金属と原子との間の相互作用によって生じる摂動に対するハミルトニアンを設定して、これから計算される負イオンの状態密度を表面から無限遠まで計算すればよい。

原子が表面から離れていく過程では、電子が金属から原子に遷移して負イオンが生成される過程と、逆に電子が負イオンから金属に遷移して負イオンが中性化される過程が混在している。この場合、原子の表面からの離脱速度が大きいほど金属への電子の戻りが少なく、負イオンとして生存する確率が高いことが予想される。

原子と金属表面との相互作用については、アルカリ金属原子の金属表面への吸着現象のモデル化に際して、Gadzuk<sup>[30][31]</sup>、Remy<sup>[32]</sup>が定式化を行っている。以下では、彼らのモデルを水素原子に適用して準位シフトと準位幅の拡大を求める。

### 準位シフト

原子が金属表面に接近した位置にある時に、両者の間に働く相互作用は、古典的な鏡像ポテンシャルで考えることができる。この鏡像ポテンシャルは、図4-2に示すモデルで考えることができる。金属表面に接近した原子は、その原子核と電子の鏡像を金属内に作り出す。この時、原子のポテンシャルを一体型ポテンシャルとして考え、1個の電子のハミルトニアンを考える。ハミルトニアンは原子、金属の各々の電子について定義することができる。

$$H = H_a + H'_{a-m} \quad (4.1-a)$$

$$H = H_m + H'_{m-a} \quad (4.1-b)$$

ここで、 $H_a$ 、 $H_m$ はそれぞれ摂動のない状態の原子の価電子と金属の電子のハミルトニアンであり、 $H'_{a-m}$ 、 $H'_{m-a}$ は原子が金属表面に接近することによって生じる摂動に対するハミルトニアンである。これらのハミルトニアンは次式で与えることができる。

$$H_a = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q^2}{r}$$

$$H'_{a-m} = -\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{1}{4d} - \frac{1}{D} \right) \quad (4.2-a)$$

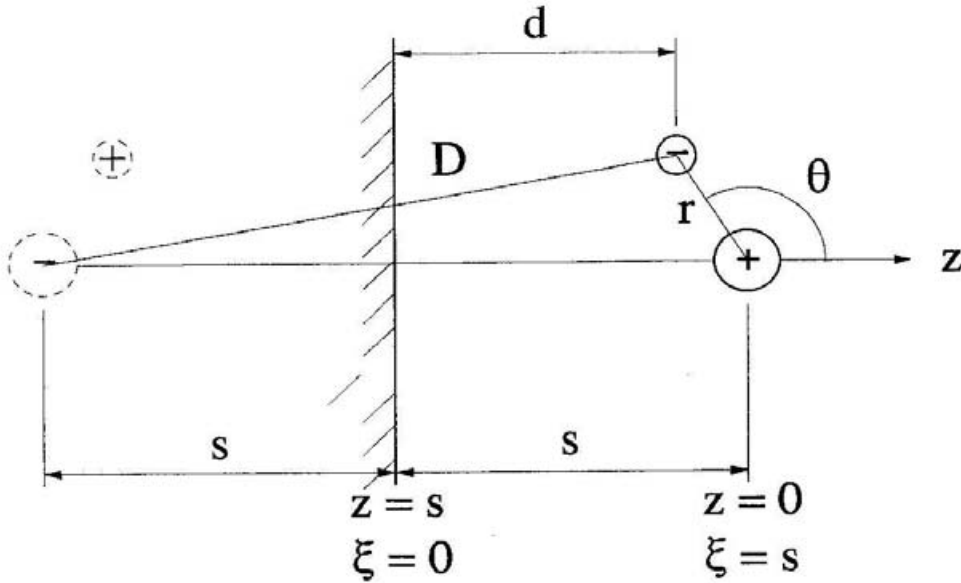


図4-2 鏡像ポテンシャルのモデル

$$H_m = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{1}{4d} - \frac{1}{D} \right)$$

$$H'_{m-a} = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q^2}{r} \quad (4.2-b)$$

ここで、 $D$ は価電子と鏡像原子核との距離であり、 $d$ は価電子と金属表面との距離である。

エネルギー準位のシフトは、上述のハミルトニアンから計算することができる。例えば、原子が金属表面に接近して摂動を受けると考えた場合、すなわち、(4.1-a)の場合、摂動によって生じる準位シフトの1次の項は次式で与えられる<sup>[33]</sup>。

$$\Delta E = \frac{\langle n, s | H'_{a-m} | n, s \rangle}{\langle n, s | n, s \rangle} = \frac{\int \varphi_{n,s}^* H'_{a-m} \varphi_{n,s}}{\int \varphi_{n,s}^* \varphi_{n,s}} \quad (4.3)$$

ここで、 $\varphi_{n,s}$ は原子の $n, s$ 準位の価電子の波動関数である。ここでは原子の価電子の波動関数は、 $1s$ 準位の波動関数を適用する。

$$\varphi_{1,s} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} a^{3/2} \exp(-ar) \quad (4.4)$$

座標系は、図4-2に示すように、座標  $z = 0$  を原子核中心に取り、 $z > 0$  を表面から離れる方向にとる。  $d$  と  $D$  は、  $r$  が十分に小さいと仮定すると、

$$\begin{aligned} d &= s + r \cos \theta \approx s + z \\ D &= 2s + r \cos \theta \approx 2s + z \end{aligned} \quad (4.5)$$

で近似できる。

(4.3) 式に (4.2-a) 式、 (4.4) 式を代入して、さらに (4.5) 式の関係を使うと、位置  $s$  における準位シフトは次式のようにになる。

$$\begin{aligned} \Delta E &= \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \int_{-(s-\xi_0)}^{+\infty} \left( \frac{1}{2s+z} - \frac{1}{4(s+z)} \right) \left( \int \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2ar} dx dy \right) dz \\ &\quad / \int_{-(s-\xi_0)}^{+\infty} \left( \int \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2ar} dx dy \right) dz \end{aligned} \quad (4.6)$$

ここで、  $x$  ,  $y$  は金属表面を含む平面上にとった座標である。また、  $z$  方向の積分範囲は金属の外側  $\xi > \xi_0$  にとり、  $\xi_0$  は次式に示すような鏡像ポテンシャルが金属中における電子のポテンシャル  $V_0$  に等しくなる距離に選んだ。

$$-V_0 = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{1}{D} - \frac{1}{4d} \right)_{\xi=\xi_0} \quad (4.7)$$

セシウムに対して  $V_0$  を  $4 \text{ eV}$  として  $\xi_0$  を計算すると、  $s = 1.0 \text{ \AA}$  で  $0.67 \text{ \AA}$  である。

(4.6) 式は、Appendix Bに示すような計算を行なうことによって、次式のようにまとめられる。

$$\begin{aligned} \Delta E &= \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \int_{-(s-\xi_0)}^{+\infty} \left( \frac{1}{2s+z} - \frac{1}{4(s+z)} \right) (2a|z|+1) \exp(-2a|z|) dz \\ &\quad / \int_{-(s-\xi_0)}^{+\infty} (2a|z|+1) \exp(-2a|z|) dz \end{aligned} \quad (4.8)$$

(4.8) 式を数値積分することによって、準位シフトを求めることができる。例として、セシウム表面と水素原子に対して、表面からの距離  $s$  における準位シフトを計算すると図4-3のようになる。

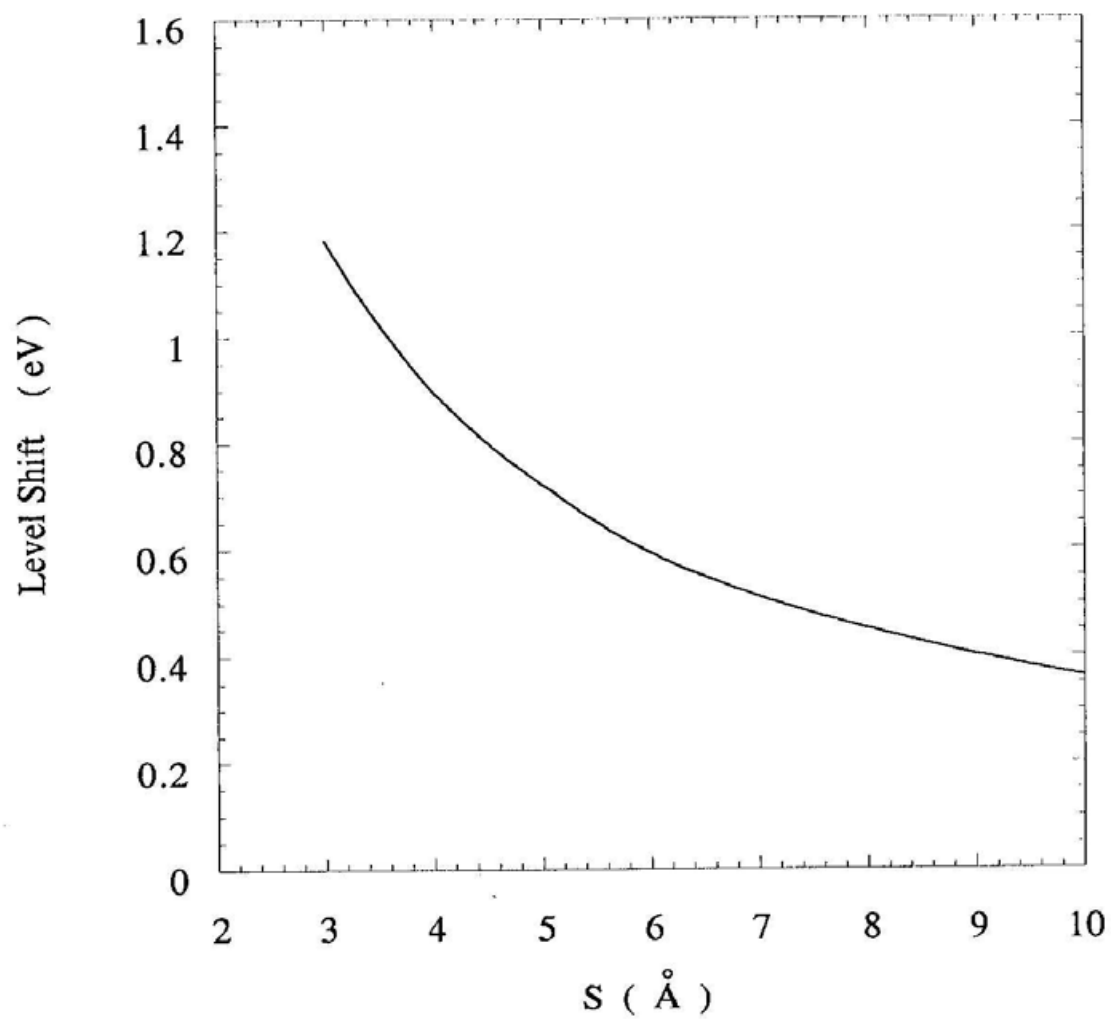


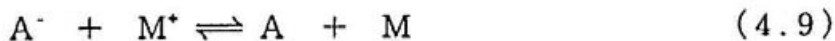
図4-3 セシウム表面からの距離  $s$  に対する水素原子のエネルギー準位のシフト



### 準位幅の拡大

相互作用により生じるもう1つの効果は準位幅の拡大である。摂動のない状態では原子の価電子のエネルギー準位は離散的であり、その幅はほとんど無限小で唯一に決められる値をとる。これに対して、摂動があるとエネルギー準位は有限幅に拡大される。この準位幅の拡大が生じる理由は次のように考えられている<sup>[30]</sup>。原子の価電子の波動関数と金属の自由電子の波動関数が重なる距離になると、金属の自由電子と原子の価電子との間で共鳴を起こし、両者の間で電子の遷移が可能になる。遷移時間が有限であることから、不確定性原理によってエネルギー準位にも不確定性が生じ、すなわち、エネルギー準位に有限幅が生じる結果となる。

再び、図4-1の原子が金属表面に接近した状態を考える。共鳴状態にある電子は、シフトしたエネルギー準位がフェルミ準位に近い場合、負イオン生成過程では次式で表わされる状態にある。



ここで、Aは原子の状態を、Mは金属の状態を表す。左向きの反応は共鳴によるイオン化で、初期状態で金属内にある電子が原子の価電子殻に遷移する反応である。右向きの反応は共鳴による中性化で、原子の価電子殻に捕獲されている電子が摂動により金属内へ遷移する反応である。

単位時間あたりの遷移確率は、1次摂動に対する黄金律により次式で与えられる<sup>[34]</sup>。

$$w = \sum \frac{2\pi}{\hbar} \rho_k |T_{i,f}|^2 \quad (4.10)$$

ここで、 $\rho_k$ は金属中の電子の状態密度であり、 $T_{i,f}$ は遷移行列要素である。遷移確率は、1個の電子のハミルトニアンとして、(4.1-b)の状態を考えて計算することができる。遷移行列要素の初期状態は金属の状態にとる。また、終状態は摂動のない原子の状態にとる。この時、終状態を1s準位の価電子の波動関数とすると、遷移行列は次式で定義される。

$$T_{i,f} \approx \langle 1, s | H'_{m-a} | \phi_i \rangle \quad (4.11)$$

すなわち、

$$T_{i,f} = \int_{-s}^{+\infty} \int \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi_i \left( -\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 r} \right) \varphi_{1,s}^* dx dy dz \quad (4.12)$$

$\varphi_i$  は1個の金属の自由電子の波動関数であり、次式で与えられる<sup>[30]</sup>。

$$\varphi_i = \left( \frac{1}{k_v L^{3/2}} \right) e^{i(k_1 x + k_2 y)} \left[ (k'_3 + k_3) e^{ik'_3 \xi} + (k'_3 - k_3) e^{-ik_3 \xi} \right] \quad (\xi < 0)$$

$$\varphi_i = \left( \frac{1}{k_v L^{3/2}} \right) e^{i(k_1 x + k_2 y)} 2 k'_3 e^{ik_3 \xi} \quad (\xi > 0) \quad (4.13)$$

ここで、 $k$ 、 $k'$  は金属中の電子の波数であり、 $k'$  は図4-1に示すように伝導帯の底でエネルギー0となる電子のエネルギーに等価な波数である。また、添え字の数字1、2、3は、それぞれ、 $x$ 、 $y$ 、 $z$ 方向を表示している。 $L$ は有限の立方体金属の一辺の長さであり、 $k_v$ はフェルミ半径である。上式を用いると(4.12)式は、

$$T_{i,f} = \frac{2 k'_3 a^{3/2} q^2}{4\pi\epsilon_0 \sqrt{\pi} k_v L^{3/2}} \int_0^s \exp(ik_3 \xi) \left[ \int \int_{-\infty}^{+\infty} \exp i(k_1 x + k_2 y) \frac{\exp(-ar)}{r} dx dy \right] dz \quad (4.14)$$

となる。

次に、金属中の電子の状態密度を与えるために次の仮定を行う。まず、金属は $x$ 、 $y$ 方向に無限であるとする。そして、パウリ原理から1つのエネルギー準位にスピンの異なる2つの電子が入れる状態が保たれているものとする。この場合、状態密度は次式で与えることができる。

$$\rho_k = \left[ \frac{m k L^3}{h^2 (2\pi)^3} \right] \sin \theta d\theta d\phi \quad (4.15)$$

$\phi$ は波数ベクトルの $x-y$ 平面への射影が $x$ 軸となす角度であり、 $\theta$ は波数ベクトルが $z$ 軸となす角度である。したがって、単位時間あたりの遷移確率 $w$ は次式から計算できる。

$$w = \frac{L^3 m k^3}{2\pi^2 \hbar} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} \sin\theta |\Gamma_{i,d}|^2 d\theta \quad (4.16)$$

(4.14) を計算して、さらに (4.16) 式に代入することによって遷移確率は次式のようになる。

$$w = \frac{8 m k a^2 q^2 s}{(4 \pi \epsilon_0)^2 \hbar^3 k_v^2} \exp(-2 a s) \quad (4.17)$$

この計算の詳細は、Appendix Cに示す。

遷移時間  $\tau$  は、

$$\tau = 1/w \quad (4.18)$$

から求めることができる。準位幅  $\Gamma(s)$  はエネルギーの不確定さであり、

$$\Gamma(s) = \hbar w \quad (4.19)$$

として計算される。水素原子に対して、セシウム表面からの距離  $s$  における準位幅を計算した結果を図4-4に示す。この結果からわかるように、レベル幅は表面から離れるにしたがって指数的に減少していく。また、1 s レベルの波動関数を適用すると、原子が表面から離れるにしたがって急激にレベル幅が減少することがわかる。

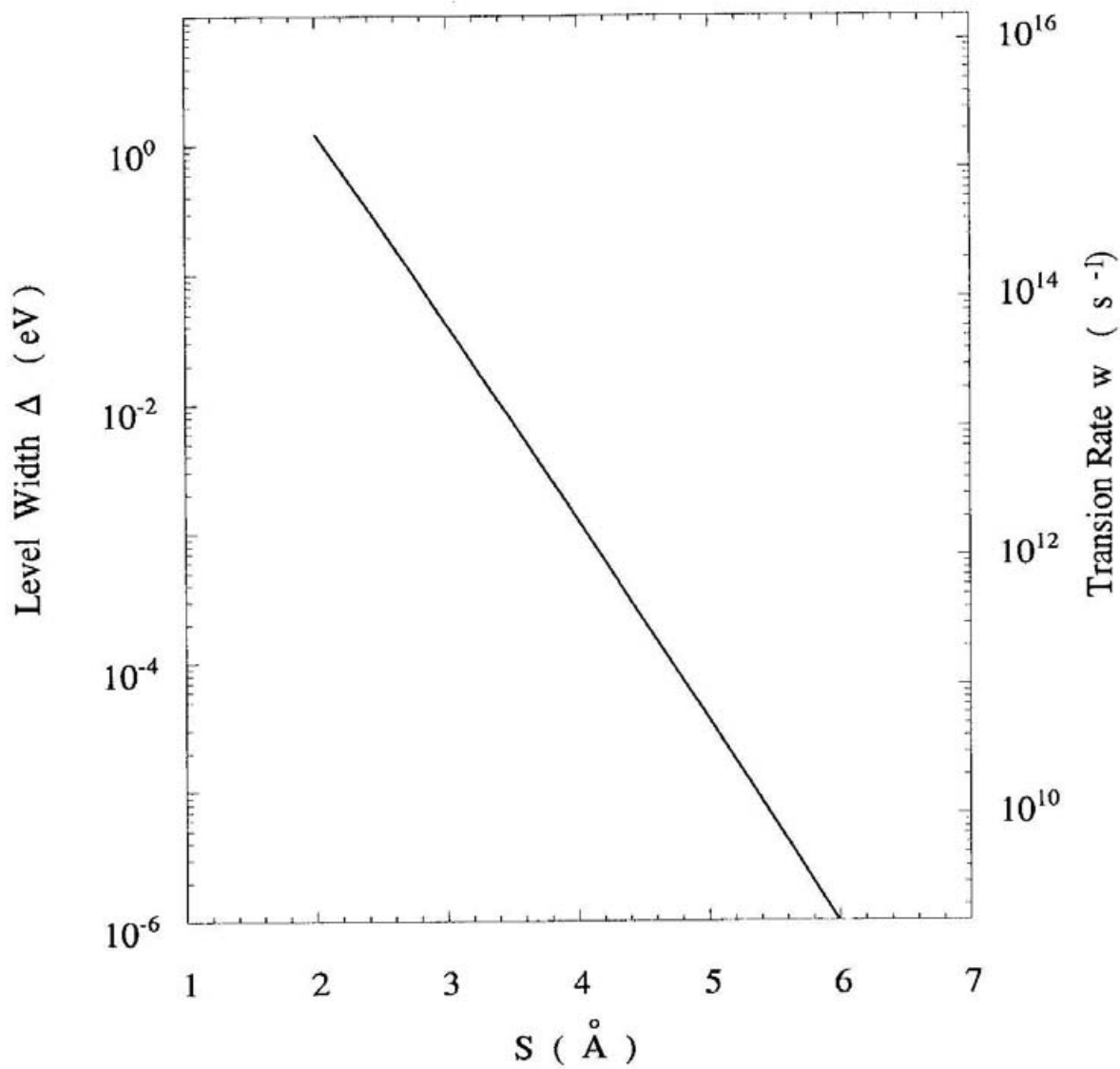


図4-4 セシウム表面からの距離  $s$  に対する水素原子の準位幅の変化

## 4.2 金属表面における負水素イオン生成効率<sup>[35] [36]</sup>

金属表面から原子が離脱していく行程では、原子と金属との間の相互作用は表面からの距離、言い替えれば時間に応じて変化していく。したがって、負イオン生成効率を求める場合には、時間に依存する摂動を考慮して定式化しなければならない。

時間変化を考慮すると、系のハミルトニアンは次式で与えることができる。

$$H(x(t)) = H_0 + H_1(x(t)) \quad (4.20)$$

ここで、 $H_0$  は摂動のない状態にある系のハミルトニアンであり、原子が金属表面から遠く離れた位置にある時の定常状態として与えられる。 $H_1(x(t))$  は、位置  $x(t)$  における摂動のハミルトニアンである。摂動が時間に依存するような場合に、系がある特定の状態に見いだされる確率振幅を求める方法として、グリーン関数の摂動展開を計算する方法がある。ここでは、Blandin, Nourtierらによって提案された方法<sup>[26]</sup>によって、表面から離脱する原子が負水素イオンになる確率を求める。

多粒子系において、時刻  $t$  に粒子が与えられた状態に存在する確率を表わす密度演算子  $n(x)$  の基底状態での期待値  $\langle n(x) \rangle$  は、フェルミ粒子に対して、1粒子グリーン関数  $G(x, t, x', t')$  によって次式で与えられる。

$$\langle n(x) \rangle = -i \operatorname{tr} G(x, t, x', t') \quad (4.21)$$

したがって、金属表面におけるイオン生成過程に対して、原子の価電子の占有期待値は次のようになる。

$$n_d(t) = \langle C_d^\dagger(t) C_d(t) \rangle = -i G_{dd}(t, t+) \quad (4.22)$$

ここで、 $c_d^\dagger$ ,  $c_d$  は、それぞれ原子の価電子として設定した  $d$ -準位電子の生成演算子、消滅演算子である。また、 $t+$  の記号は  $t$  よりも無限小遅れた時間を表わす。

時間に依存する摂動において、グリーン関数は初期の状態ベクトル（基底状態）を  $|\varphi(0)\rangle$  とすると次式で与えられる。

$$G(t, t') = \frac{-i \langle \varphi(0) | T[A(t)B^\dagger(t')] | \varphi(0) \rangle}{\langle \varphi(0) | \varphi(0) \rangle} \quad (4.23)$$

ここで、 $A(t)$ 、 $B^+(t)$  はハイゼンベルグ表示による場の演算子であり、 $T$  は  $T$  積を表わす。相互作用表示を用いると、(4.23) 式は次のようになる。

$$G(t, t') = \frac{-i \langle \varphi(0) | T [\tilde{A}(t) \tilde{B}^+(t')] | \varphi(0) \rangle}{\langle \varphi(0) | S | \varphi(0) \rangle} \quad (4.24)$$

$S$  は  $S$ -行列を示す。また、 $\tilde{A}(t)$ 、 $\tilde{B}^+(t)$  は相互作用表示に基づく演算子であり、次式で定義される。

$$\begin{aligned} \tilde{A}(t) &= e^{iH_0 t} A(t) e^{-iH_0 t} \\ \tilde{B}^+(t) &= e^{iH_0 t} B^+(t) e^{-iH_0 t} \end{aligned} \quad (4.25)$$

(4.24) 式のグリーン関数は、ダイアグラム法を応用したKeldyshの方法<sup>[37]</sup>を利用して計算することができる。この計算方法については、Appendix Dで述べる。

表面における負イオン生成に対して、次式のアンダーソンハミルトニアン<sup>[26]</sup>の形のハミルトニアンが適用できるとする。ただし、電子のスピンは無視できるとする。

$$H(t) = \sum_{\mathbf{k}} \epsilon_{\mathbf{k}} n_{\mathbf{k}} + \epsilon_d(t) n_d + \sum_{\mathbf{k}} [ V_{d\mathbf{k}}(t) C_d^\dagger C_{\mathbf{k}} + \dots ] \quad (4.26)$$

ここで、 $\mathbf{k}$  は伝導帯の電子の波数ベクトルであり、 $\epsilon_{\mathbf{k}}$ 、 $\epsilon_d$  は、それぞれ伝導帯の電子と  $d$ -電子のエネルギーである。また、 $V$  は  $V_{d\mathbf{k}} = \langle d | V | \mathbf{k} \rangle$  で定義される2つの電子の相互作用による行列要素である。このハミルトニアンをAppendix Dに示すグリーン関数の計算結果に適用することにより、 $n_d(t)$  として次式が得られる<sup>[26]</sup>。

$$n_d(t) = \frac{\Delta_0}{\pi} \int_{-\infty}^{\epsilon_f} d\epsilon \left| \int_{-\infty}^t u(\tau) \exp\left(i \int_{\tau}^t [\epsilon - \epsilon_d(t') + i\Delta(t')] dt'\right) d\tau \right|^2 \quad (4.27)$$

ただし、 $u(t) = \sqrt{\Delta(t)}$

- $\Delta_0$  : 摂動を与えるポテンシャル
- $\epsilon$  : 金属電子のエネルギー準位
- $\epsilon_f$  : フェルミ準位
- $\Delta(t)$  :  $d$ -準位電子の準位拡大幅
- $\epsilon_d(t)$  :  $d$ -準位電子のエネルギー準位

(4.27) 式の誘導は、Appendix Dに続けて記述した。

(4.27) 式からわかるように、 $n_d(t)$  は  $\Delta(t)$  の減衰の仕方によってその解の形が変わる。4.1節で述べたように、原子が表面から離れていく場合には、 $\Delta(t)$  は表面からの距離によって、すなわち、時間の経過とともに指数的に減衰していく。したがって、 $\Delta(t) \propto \exp(-\alpha x) = \exp(-\alpha v_z t)$  として、(4.27) 式に代入して計算を行うことができる。低エネルギーで表面から散乱する原子に対しては、負イオン生成効率は次式のようなになる。

$$\beta^- = n_d(\infty) \approx \frac{2}{\pi} \exp \left[ \frac{-\pi(\phi - \epsilon_a)}{\alpha v_z} \right] \quad (4.28)$$

ここで、 $\phi$  は仕事関数、 $\epsilon_a$  は原子の電子親和力であり、 $v_z$  は金属表面から離脱する原子の表面に垂直な方向の速度成分である。また、 $\alpha$  は準位幅の拡大から求められる定数である。上式の誘導は、Appendix Eに記述した。

(4.28) 式から明らかなように、負水素イオン生成効率は、金属表面から離脱する水素原子の表面に垂直な方向の速度成分と、表面の仕事関数に依存することがわかる。

(4.28) 式によって、水素原子の金属表面に対する法線速度に対して負水素イオンの生成効率を計算した結果を、図4-5に示す。ただし、本計算では、Rasserらの解析結果<sup>[25]</sup>に基づいて、原子単位系で  $\alpha = 3.46$  と定めた。また、仕事関数は  $2.1 \text{ eV}$  とした。この結果からわかるように、低エネルギー領域 ( $v_z < 5000 \text{ m/s}$ ) では負水素イオンの生成効率はきわめて小さい。

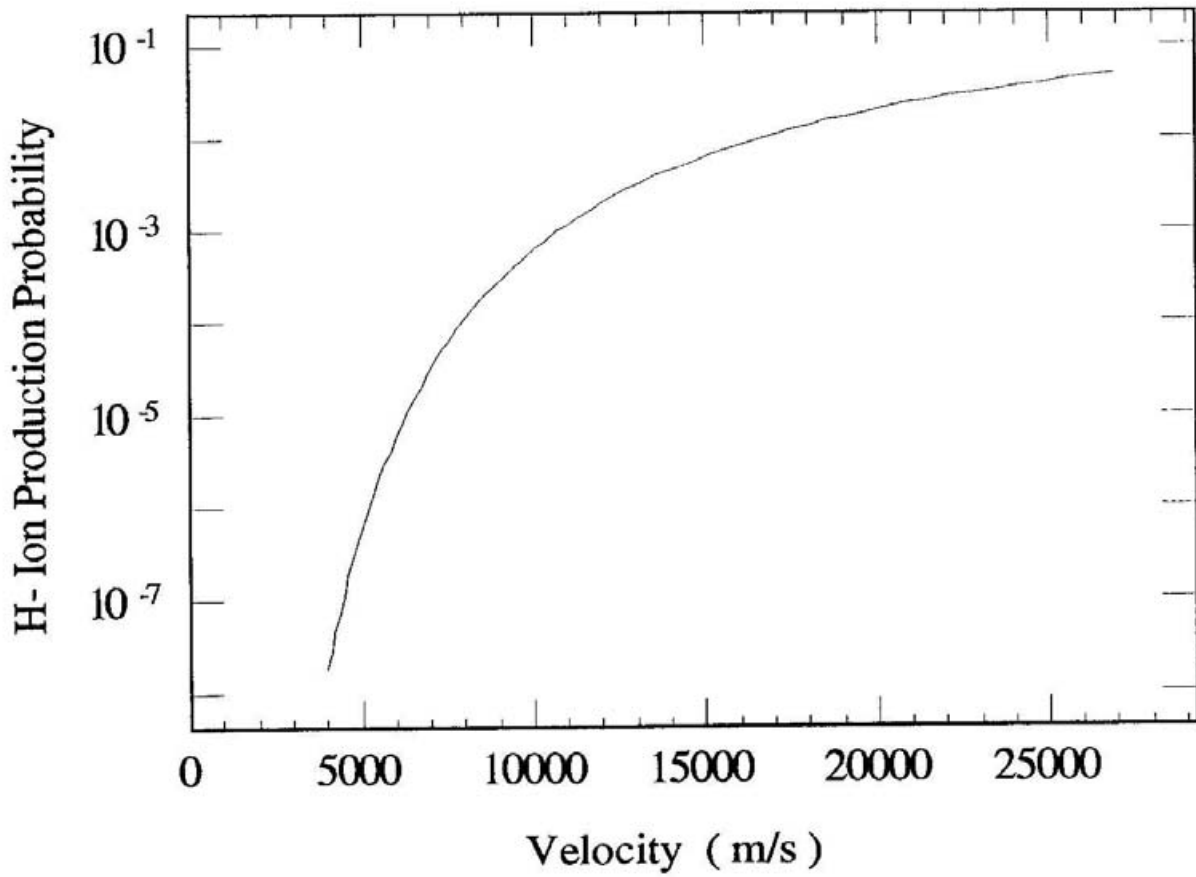


図4-5 理論式から求めた負水素イオン生成効率  
(仕事関数2.1 eVの表面として計算)



## 第5章 セシウムを吸着させた金属表面における負水素イオン生成の実験

これまでの実験から、セシウム効果はプラズマ電極表面に当たる水素原子 ( $H^0$ ) あるいは水素イオン ( $H^+$ ,  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ ) が、表面生成によって負水素イオンになるために引き起こされていることが間接的にわかった。

体積生成型の負水素イオン源中におけるプラズマ粒子のエネルギーは低い。例えば、水素原子のエネルギーは約0.5 eVであることが報告されている<sup>[38]</sup>。また、水素イオンは数eVのプラズマポテンシャルでプラズマ電極にあたる。4章で述べた負水素イオンの生成効率の理論値から予想すると、これらの粒子による負水素イオンの生成効率は小さい。しかしながら、体積生成型の負水素イオン源のプラズマ中に存在する水素原子の密度は高く、アーク条件によっては  $10^{14}$  atoms/cm<sup>3</sup> 以上になる<sup>[39]</sup>。このため、水素原子による表面負水素イオン生成は負水素イオンビーム強度の増加に十分に寄与すると考えられる。また、水素イオンも水素原子ほどの密度はないものの、負水素イオンの生成効率が大きければ、ビーム強度の増加をもたらす可能性がある。そこで、本研究では、水素原子、水素イオンのうちどれがビーム強度の増加に寄与しているかを調べるために、各粒子からの表面生成による負水素イオン生成効率を求める実験を行った。また、表面生成による負水素イオン生成効率が把握できれば、プラズマ電極表面における負水素イオンの表面生成によるビーム強度の増加を直接説明できる。

負水素イオンの表面生成の研究は、これまで表面生成型の負水素イオン源に関連して行われてきた。このため、比較的高いエネルギー (100 eV以上) の水素イオンを表面に当てて生成する負水素イオンを測定する実験が主であった。これに対して、10 eV以下の低エネルギーの水素原子や水素イオンからの負水素イオンの生成量を測定する実験は、高いエネルギー領域の実験に比べるとはるかに少なく、データに乏しい。

低エネルギーの水素原子による負水素イオンの生成実験は、最初にGrahamによって行われた<sup>[40]</sup>。この実験では、セシウムを吸着させたモリブデン表面に数eVの水素原子を入射させ、表面の仕事関数と負水素イオン生成量の相対関係を求めている。Seidlらは、表面をセシウムの厚膜で被ったターゲットに2500 Kの水素イオンを当てて、負水素イオンの生成効率を測定した<sup>[41]</sup>。同様の実験は、Melnychukらによっても行われている<sup>[42]</sup>。Melnychukらの実験では、2000 K前後の水素原子線をセシウムを吸着させたターゲット表面に当てて、生成する負水素イオン量を測定している。その結果、セシウムを吸着させたシリコン表面について、生成効率  $1 \times 10^{-3}$  が得られている。しかしながら、これらの実験では、ターゲット表面に到達している水素原子の量は

水素解離器のフィラメント温度から計算した値を使用しており、厳密には測定されていない。また、仕事関数との対応も明確には示されていない。

本研究では、低エネルギーの水素原子と水素イオンを個々にセシウムを吸着させた金属表面に入射させて、負水素イオン生成効率を求める実験を行った。実験は、水素原子 ( $H^0$ ) と水素イオン ( $H^+$ ,  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ ) に分けて行った。まず、熱運動速度の水素原子をセシウムを吸着させたモリブデン表面に入射させ、表面で生成する負水素イオンの生成効率を求めた。次に、各水素イオンを約 1 eV のエネルギーでセシウムを吸着させた金属表面に入射させて、表面で生成する負水素イオンの生成効率を求めた。

本章では、これらの実験とその結果について述べる。そして、実験で求めた負水素イオンの生成効率から体積生成型の負水素イオン源におけるセシウム注入時のビーム強度の増加が説明できるかどうかの考察を行う。まず、5.1 節で水素原子からの負水素イオン生成実験とその結果を述べる。そして、5.2 節で正の水素イオンからの負水素イオン生成実験とその結果について述べる。また、各節では実験結果と 4 章で述べた理論式から求めた理論値との比較を行うことにより、低エネルギー領域において、理論式が有効かどうかの検討も行う。そして、最後に、体積生成型の負水素イオン源において、セシウム注入時に表面生成によって負水素イオンがどれくらい増加するかを評価する。

## 5.1 熱運動速度の水素原子からの負水素イオンの生成実験

### 5.1.1 実験装置

水素原子からの負水素イオン生成効率を測定するための実験装置の構成を図 5-1 に示す。この実験装置は、水素解離器で生成した水素原子をセシウムを吸着させたターゲットの表面に入射して、生成する負水素イオンを取り出して測定できるようになっている。生成した負水素イオンはその一部を取り出して加速し、ExB 質量分析器 (Wien filter) を通して質量分析して、測定器へと導いた。負水素イオンの測定は、ファラデイカップによる方法とマイクロチャンネルプレートによる方法の二通りで行った。以下、主要部分の説明を行う。

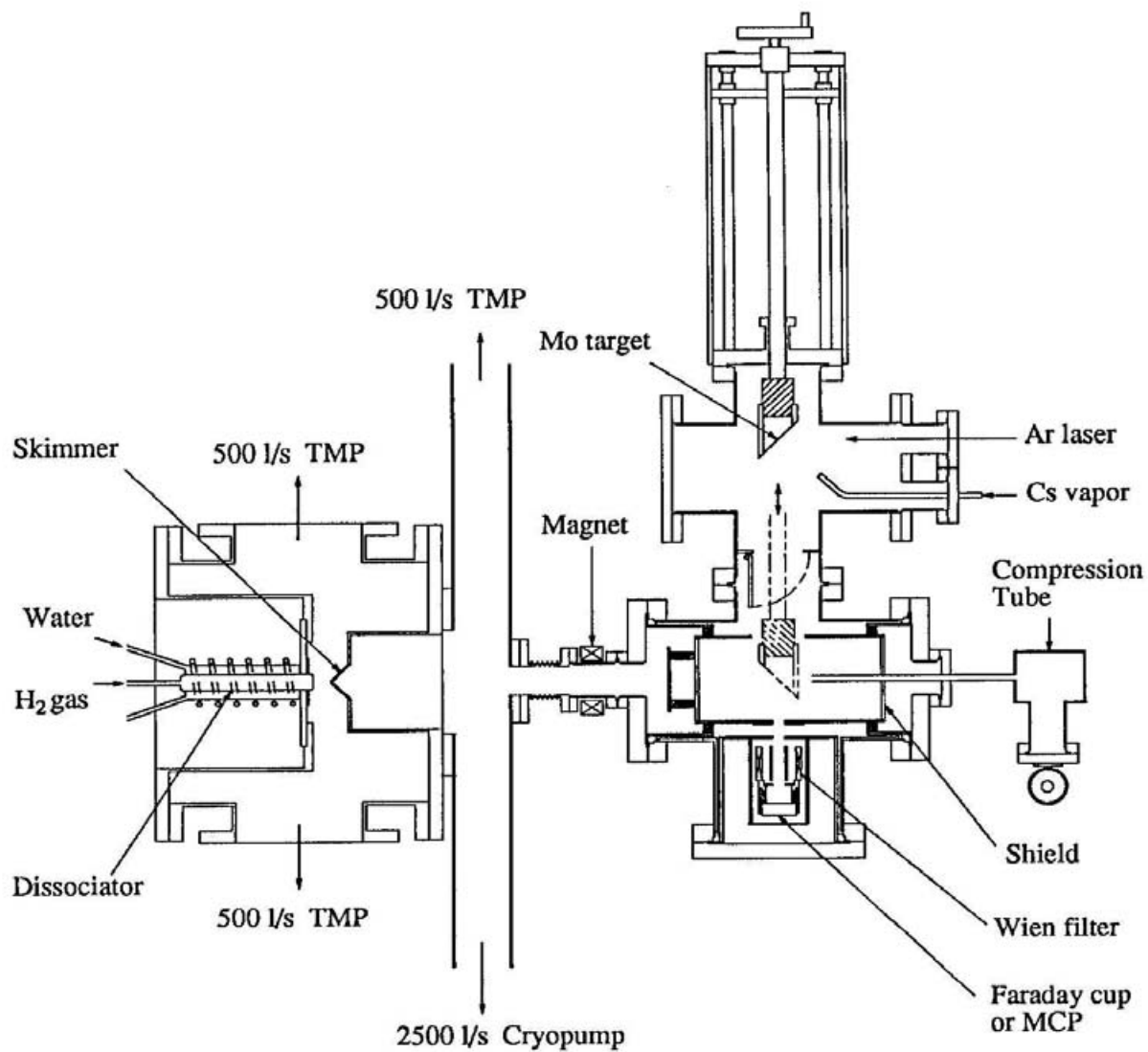


図 5 - 1 水素原子からの負水素イオン生成効率を測定する実験装置の概略図

## 1) 水素原子生成部 (水素解離器)

水素解離器は水素分子を水素原子に解離する装置であるが、解離器としては解離度が高く、作動が容易な高周波放電管を使用した。放電管は外形24 mm、厚さ1.5 mm、長さ約15 mmのパイレックスガラス製で、片側から水素ガスを導入する。放電管の周囲には外形44 mm、肉厚2 mmのパイレックスガラス管が同心円筒状に取り付けられており、この中に冷却水を流している。放電管のもう一方の端は直径2.5 mmでノズル状になっており、この穴から水素原子を放出する。水素解離器から20 mm下流に、直径5 mmの穴のついたスキマーが設置されている。スキマーによってビーム軸からの傾きが大きい水素原子を取り除き、軸に沿った水素原子線を得ることができる。

放電管はLC共振回路の外形8 mmの銅管を6回巻いた高周波コイルの軸上に設置されている。LC共振回路に高周波発振器から高周波電力を供給し、放電管内に高周波電場を形成して、水素ガスに高周波放電を起こさせる。高周波発振器は周波数26.5 MHz、出力約200 Wで使用した。高周波発振器はパルスモードで動作させ、水素原子線をパルスで発生させることによって、水素原子線検出時のS/N比 (Signal-to-noise ratio) を高くした。水素ガスはマスフローコントローラー (SEC310, PAC-S5, STEC 製) を使用して15 CCM~50 CCMの範囲で流量を調整した。この実験では、水素原子の生成量が多くかつ真空度がよい条件から、25 CCMの流量を流した。水素原子の生成量の測定については、4) 項で述べる。

水素解離器に導入した水素ガスの排気は、ターボ分子ポンプ (500 l/s) 3台とクライオポンプ (2000 l/s) 1台によって行なった。放電管内の水素ガスの圧力はかなり高く (約0.1 Torr以上)、水素解離器直後の真空度をよくすることは困難である。このため、スキマーの前後の真空容器を別々のターボ分子ポンプで排気することにより差動排気を行い、スキマー下流の真空度をよくして、残留ガスによる水素原子の散乱を抑えた。

## 2) 負水素イオン生成部

負水素イオン生成部は、水素解離器で発生させた水素原子をターゲットまで導いて負水素イオンを生成させる真空容器 (以下ターゲット容器と称す) と、セシウムをターゲット表面に吸着させるための準備室としての真空容器から構成されている。

ターゲットは、厚さ0.05 mm、幅24 mm、長さ42 mmの薄いモリブデン板をサポ

ートを介してセラミック製の絶縁ブロックに取り付けたものである。ターゲットの材質はプラズマ電極と同じ材質にするためにモリブデンを選んだ。ターゲットは約45 Aの電流を流して、800℃ぐらいまで加熱することができる。これにより、ターゲットの脱ガスや吸着したセシウムの除去ができるようにした。ターゲットは、回転導入機と直線導入装置を組み合わせた駆動系に取り付けてあり、回転、移動できるようになっている。

ターゲット表面へのセシウムの吸着と負水素イオンの生成は別々の真空容器で行った。まず、ターゲット表面へのセシウムの吸着は、セシウム蒸気が広範囲に飛散して負水素イオンの測定系を汚染しないように、ゲート弁を介して区切られた準備室で行った。そして、セシウム吸着後、セシウムの注入を止めてターゲット表面の仕事関数を測定した後に、ターゲットをビーム軸上まで移動させた。セシウムの注入系は、3章で述べたようなりザー容器にセシウムを入れ、加熱・蒸発させる方式のものを採用した。また、セシウム吸着時の仕事関数の変化は、3章で述べたアルゴンレーザーを照射して表面から放出される光電子の電流値を測定する方法によって測定した。

ターゲット容器内には、絶縁物を介してアルミニウムの円筒容器が組み込んである。円筒容器入口にはスリットが取り付けられてあり、ターゲットにあたる水素原子線を絞っている。負水素イオンを生成させる際には、ターゲットはこの円筒容器内に入りビームライン上に配置される。円筒容器とターゲットは同じ電位にしてあり、生成した負水素イオンはターゲット表面から等方的に放出される。生成した負水素イオンはその一部が円筒容器の側面に設置された引き出し電極の開口部に到達し、測定系へと導かれる。測定系に導く際には、ターゲット側に3 kVの負電圧を印加して、引き出し電極と測定系の間で負水素イオンを加速させた。

水素解離器では水素原子の他に電子や水素イオンも発生する。これらを取り除くために、永久磁石、正の電極をターゲット容器の前方に設置し、水素原子のみがターゲット表面に到達するようにした。ターゲット容器にはレーザー導入用のビューイングポートが取り付けられてあり、ビームライン上でもターゲット表面の仕事関数を測定できるようにした。

負水素イオン生成部の真空排気は、ターゲット容器の下に5001/sのターボ分子ポンプを取り付けて行った。実験中のターゲット容器の真空度は、水素ガスを25 CCM流した状態で約 $1 \times 10^{-5}$  Torrであった。



### 3) 負水素イオン検出部

引き出された負水素イオンはExB質量分析器へと導かれる。ExB質量分析器は、偏向磁石として永久磁石を使用し、磁場を固定して、偏向電極の電圧を変化させていくことにより負水素イオンを選別した。ExB質量分析器の磁場は中心軸状で磁束密度が約750 gaussである。このExB質量分析器の後に、ファラディカップまたはマイクロチャンネルプレート（以下MCPと略す）を取り付けて負水素イオンを測定した。

ファラディカップは負水素イオンの絶対量を測定するために使用した。入射する負水素イオンの電流値を測定することにより、ファラディカップに到達している負水素イオンの総数を求めた。一方、入射原子の速度の変化による生成量の変化や、ターゲット表面の仕事関数の変化による生成量の変化の検出は、負水素イオンの生成量が少ないことが予想され、ファラディカップでは困難である。そこで、負水素イオン生成効率の速度依存性や仕事関数依存性を測定するときにはMCPを使用した。MCPは入射粒子を二次電子に変えて、それを増倍させていく装置である。MCPは高利得で、また1個の負水素イオンのシグナルを数10 nsの時間応答で取り出すことが可能なため、入射イオンをパルスとしてカウントすることができる。図5-2にMCPによる負水素イオン測定の回路のブロック図を示す。この実験では、MCPの入口側を-1600 V、出口側を-145 Vにして、MCPからシグナルを取り出した。そして、シグナルを増幅した後パルスカウンターで20秒間のパルス数を測定することによって、MCPに到達している負水素イオンの粒子数を求めた。MCPはタンデム型のMCP（F2222-21、浜松ホトニクス社製）を使用した。

### 4) コンプレッションチューブ

負水素イオンの生成効率を求めるためには、ターゲットに到達している水素原子の絶対量を測定する必要がある。このため、実験ではコンプレッションチューブを使用してターゲット表面に到達している水素原子の絶対量を測定した。

コンプレッションチューブによる水素原子の測定方法の概略を図5-3に示す。コンプレッションチューブは、十分な長さを持った円形導管とその一端に取り付けたゲージポートを持つ小さい真空容器から構成されている。これを図5-1に示すように、チューブの先端がターゲット表面位置にくるようにビーム軸上に設置し、飛来してくる水素原子のフラックスを測定する。

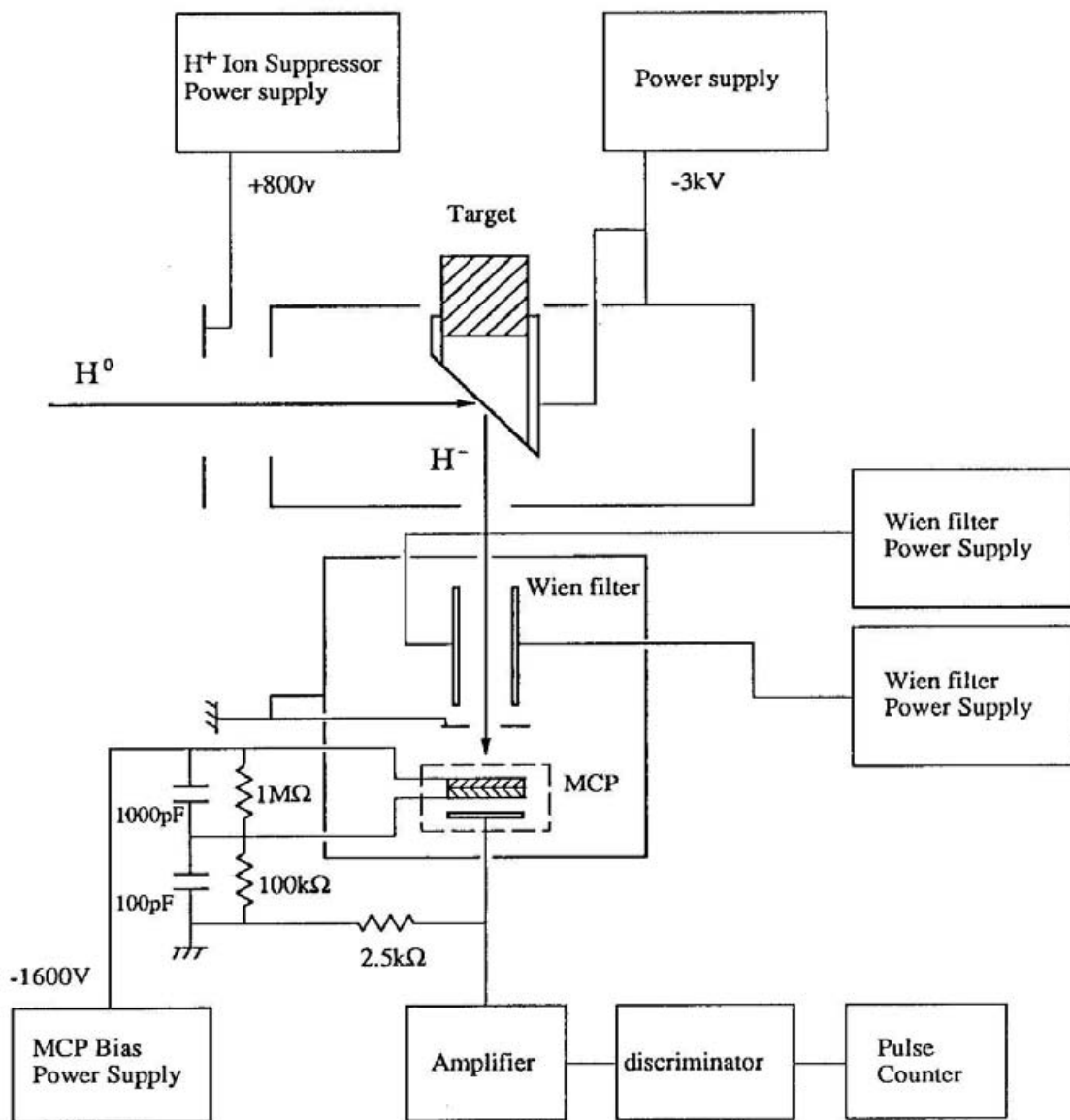


図 5 - 2 MCPを用いた測定系のブロック図

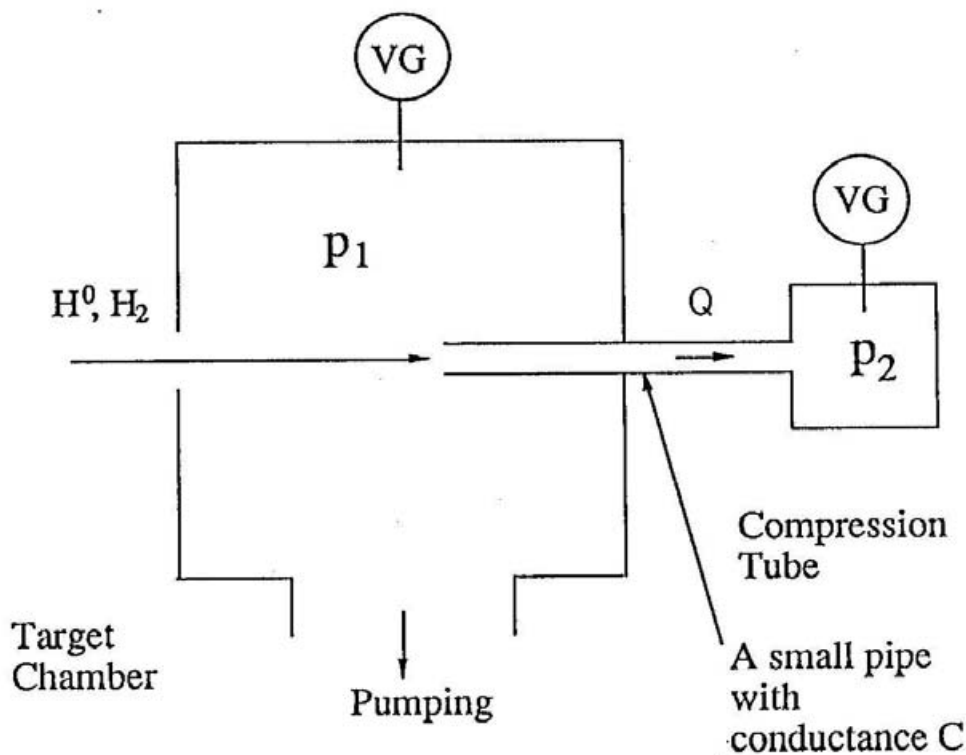


図5-3 コンプレッションチューブによる水素原子フラックス測定の原理図

水素解離器から放出された水素原子は導管の中を通り、後方の真空容器の中に入る。水素原子は真空容器中で壁に衝突してエネルギーを失い、 $H^0 + H^0 \rightarrow H_2$ の再結合反応を起こして水素分子になる。この水素分子はターゲット容器側に戻る。この時、導管の単位断面あたりの水素分子のフラックス $Q$ は次式で与えられる。

$$Q = \frac{C(P_2 - P_1)}{S} \quad (5.1)$$

ここで、  
 $C$  : 導管の水素分子に対するコンダクタンス (1/s)  
 $P_1$  : ターゲット容器の真空度 (Torr)  
 $P_2$  : コンプレッションチューブの真空度 (Torr)  
 $S$  : パイプの断面積 ( $cm^2$ )

である。

コンプレッションチューブ内の真空度とターゲット容器の真空度が安定な状態のときには、チューブに流れ込む水素原子線のフラックスとターゲット容器に戻る水素分子の



フラックスが釣り合っている。したがって、この時のコンプレッションチューブの真空度を測定することにより、(5.1)式から水素分子のフラックスを算出することができ、導管を通過する水素原子線のフラックスを求めることができる。

ターゲット容器に戻る水素分子は室温とみなしてよいため、円形導管のコンダクタンスは次式で計算できる<sup>[43]</sup>。

$$C = \frac{65 D^3}{\sqrt{M} l} \quad (5.2)$$

D : 導管直径 (cm)  
l : 導管長さ (cm)  
M : 気体の質量 (g/mol)

実験では、導管は内径0.7 cm、長さ30 cmを選んだ。

水素解離器内で水素分子がすべて解離して水素原子になるわけではないため、水素原子線は水素原子と水素分子が混在した状態でターゲット表面に到達している。したがって、実際に表面に入射している水素原子のフラックスは、水素原子線中の水素原子と水素分子の比率を求めて、次式の関係から補正して求める必要がある。

$$Q = \frac{1}{2} Q_H + Q_{H_2} \quad (5.3)$$

ここで、 $Q_H$  が実際に表面に入射している水素原子のフラックスであり、 $Q_{H_2}$  は水素分子のフラックスである。水素原子線中に含まれる水素原子と水素分子の比率は4重極質量分析器(AQA-100 MPXアネルバ製)によって測定した。

コンプレッションチューブ内の真空度の測定は、水素分子が再解離することを防ぐために、スピニングロータゲージ(VISCOMAC VM211 ライボルト社製)を使用して行った。スピニングロータゲージは、鋼球を磁気浮上させた状態で回転させ、その自由回転数が気体分子の粘性抵抗によって減衰する割合から圧力を測定する真空計である。このため、水素分子が再解離するおそれがない。

上述の方法で水素解離器に流す水素ガスの流量を変化させて、水素原子のターゲット表面上におけるフラックスを測定した結果を図5-4に示す。図からわかるように、水素ガス流量が25 CCM以上では、水素ガス流量の増加に比べて水素原子フラックスの増加は少ない。これは、ガス圧の高い領域では、ガス流量を増加させた場合、ガス流量の

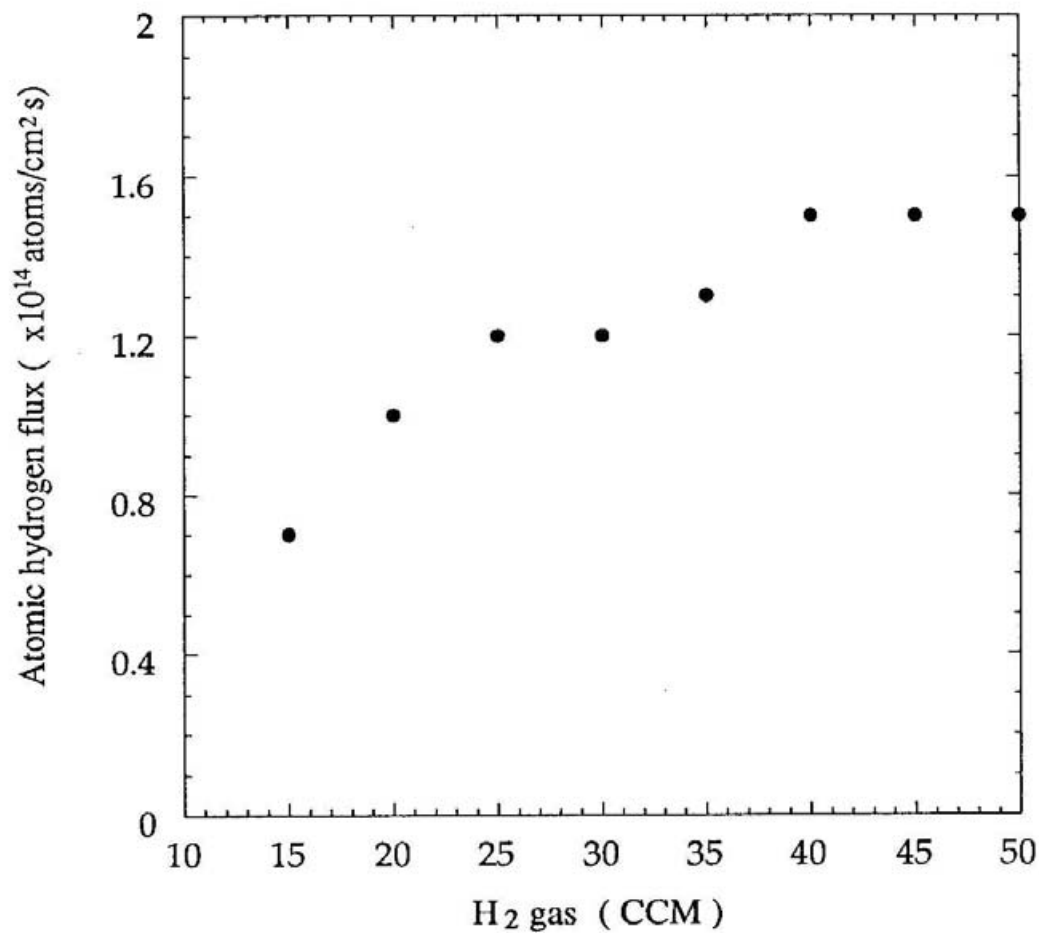


図5-4 水素解離器への水素ガス流量に対するターゲット表面における水素原子のフラックス

増加率よりも水素原子の再結合の反応断面積の増加率の方が大きくなるためであると考えられる。この結果から、実験では、水素原子量を多く確保できて、かつ容器内の真空度をできるだけよくするために、水素ガス流量は25 CCMに選んだ。なお、ガス流量が15 CCM以下では、プラズマが安定して生成されなかった。

### 5.1.2 負水素イオン生成効率の測定

ファラデイカップによって測定した負水素イオンの生成量を図5-5に示す。図には、ExB質量分析器の電圧を変化させていったときに、検出した電流値から求めた負水素イオンの量が表わしてある。セシウムを吸着させる前に、ターゲットに水素原子を当てたときには負水素イオンは検出されなかった。ターゲットにセシウムを吸着させると、図5-5に示すように負水素イオンを検出することができた。この時、セシウムを吸着させたターゲット表面にアルゴンレーザーを照射した結果、表面から放出された光電子の電流値は0.55  $\mu$ Aであった。光電子電流値に対応する仕事関数は、Appendix Aに示した結果から、約2.1 eVであると考えられる。

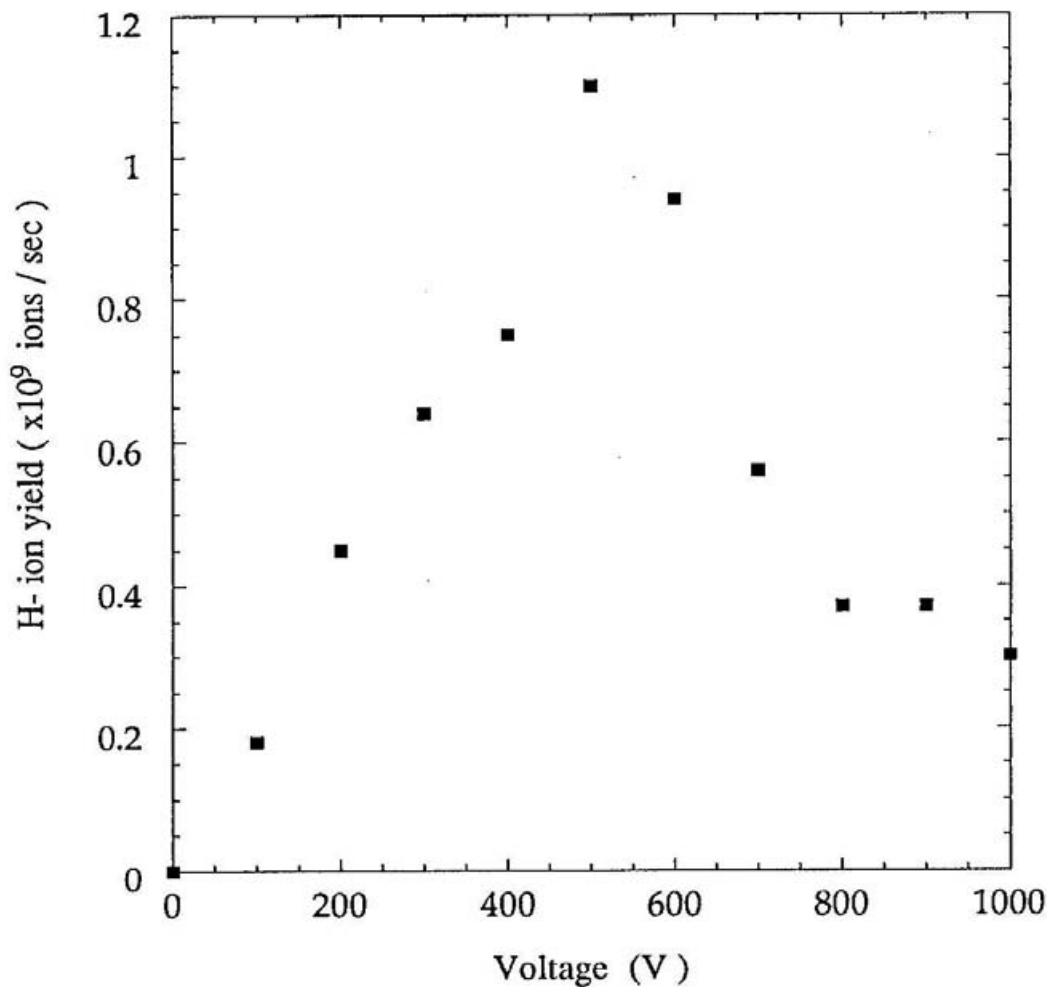


図5-5 水素原子からの負水素イオン生成量

負水素イオンの生成効率は、次式のように定義した。

$$\bar{\beta} = \frac{N_{H^-}}{\Omega N_{H^0}} \quad (5.4)$$

ここで、 $N_{H^-}$ はファラディカップで検出された負水素イオンの粒子数であり、 $N_{H^0}$ はターゲットに入射している水素原子の粒子数である。 $\Omega$ は、ターゲット表面で生成される負水素イオンのうち、測定器に入る負水素イオンの比率を表わす測定系のアクセプタンスである。水素解離器で生成される水素原子は、Maxwell分布の速度分布でターゲットに入射している。また、4章で述べたように、負水素イオンの生成効率は表面から散乱する粒子の表面に対する法線速度に依存することが予想される。したがって、(5.4)式で定義した負水素イオンの生成効率は水素原子線の速度分布全体に対する平均の生成効率である。

アクセプタンスは、図5-6に示すように、ターゲットと負水素イオンの引き出し孔との位置関係から算出することができる。ターゲット表面における水素原子線の入射面積を $S_1$ とし、ターゲット表面の微小面積を $dS_1$ とする。また、引き出し孔を断面 $S_2$ とする。表面から散乱する水素原子の一部が負水素イオンになり、さらにその中で $dS_1$ から距離 $r$ にある断面 $S_2$ を通るものがファラディカップで検出される。

熱運動速度でターゲットに入射する粒子は、ターゲット表面に一時的に吸着した後に再放出される。したがって、水素原子はターゲット表面から余弦法則を満たして放出されると考えられる。この場合、アクセプタンスは次式で与えることができる。

$$\Omega = \frac{S_2}{4\pi S_1} \int \int_{S_1} \frac{1}{r^2} dS_1 \quad (5.5)$$

実験では、ターゲット表面に水素原子が入射する範囲を限定するために、ターゲットの前方に口径30mmのスリットを配置した。ターゲットはビーム軸に対して45度の角度で取り付けられている。スリットを通過してくる水素原子がターゲット表面に当たる範囲、すなわち積分領域は次式のように近似することができる。

$$\Omega = \frac{S_2}{4\pi S_1} \int_{-x_1}^{x_1} \int_{-y_1}^{y_1} \frac{1}{r^2(x,y)} dx dy \quad (5.6)$$

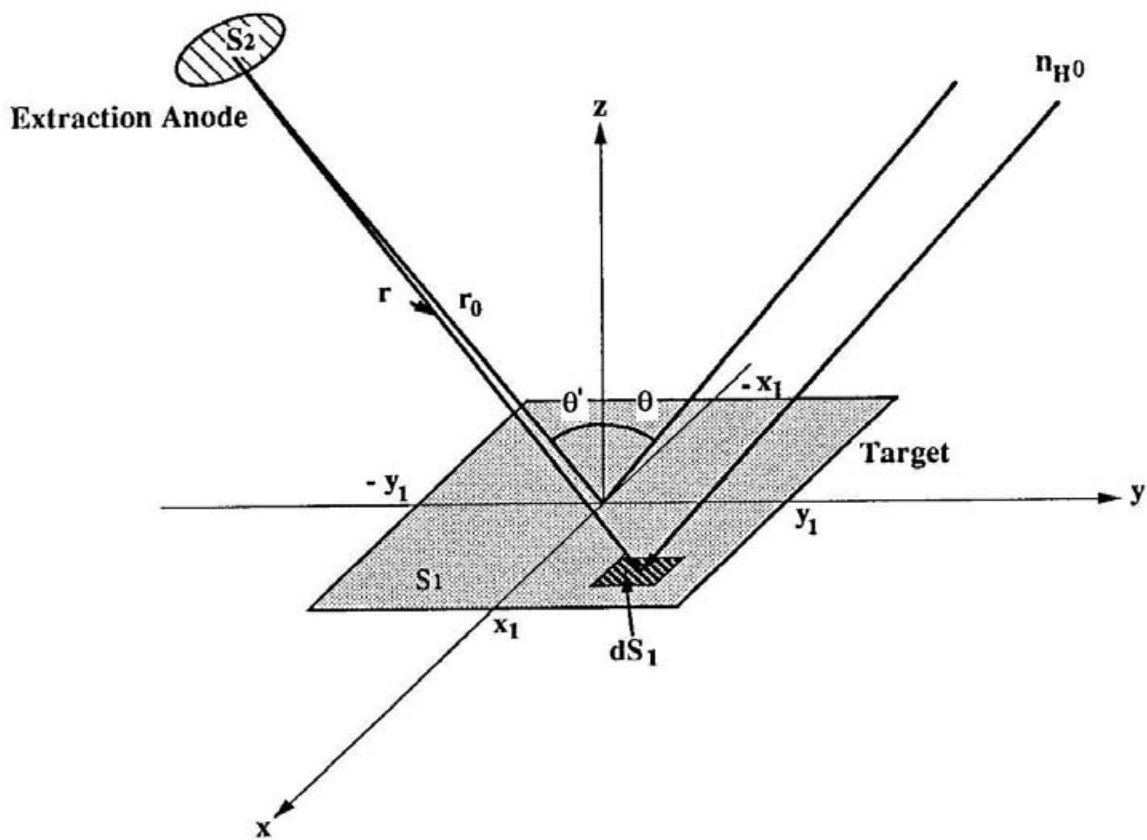


図5-6 アクセプタンス計算のための座標系

$r^2(x, y)$  を与えることによって、アクセプタンスは最終的に次式のようにになる。

$$\Omega = \int_0^{x_1} \int_0^{y_1} \left( \frac{1}{r_0^2 + \sqrt{2}r_0y + y^2 + x^2} + \frac{1}{r_0^2 - \sqrt{2}r_0y + y^2 + x^2} \right) dx dy \quad (5.7)$$

ここで、 $r_0$  は  $S_1$  と  $S_2$  の中心間の距離である。(5.7) 式に、装置の実寸法  $r_0 = 5.2$  cm、 $x_1 = 1.2$  cm、 $y_1 = 1.9$  cm を代入して計算すると、この測定系のアクセプタンスは、 $\Omega = 5.3 \times 10^{-3}$  と求められた。

実験結果から、 $N_H = 1 \times 10^9$  ions/s である。また、ターゲットに入射している水素原子のフラックスは、図5-4に示したように  $1.2 \times 10^{14}$  atoms/cm<sup>2</sup>·s であることから、 $N_H = 7.7 \times 10^{14}$  atoms/s である。ただし、水素原子線はビーム軸に平行で一様であるとした。以上から、負水素イオンの生成効率、 $\beta = 2.5 \times 10^{-4}$  となる。

負イオン生成の理論では、(4.28)式からわかるように、生成効率は表面の仕事関数と表面からの原子の離脱速度に依存する。負水素イオン生成効率の表面の仕事関数に対する依存性を調べた結果を図5-7に示す。横軸は、仕事関数に対応する値として、ターゲット表面にアルゴンレーザーを照射したときに放出された光電子の電流値を示す。縦軸は、負水素イオン生成量の測定値を、仕事関数が2.1 eVの時に測定した負水素イオン生成量で規格化した値を示す。仕事関数はセシウムを数回に分けてモリブデン表面へ吸着させて変化させた。図からわかるように、表面の仕事関数が低下すると生成効率もそれに応じて増加した。

次に、負水素イオン生成効率の水素原子の速度に対する依存性について示す。実験では、水素解離器の出口にフィラメント（タンタルチューブ）を組み込んで水素原子を加熱することによりその速度を増加させた。図5-8にフィラメントを組み込んだ水素原子生成部の概形を示す。フィラメントは幅5 mmのタンタルのリボン線を螺旋状に巻いて製作した。そして、直径約9 mm、長さ約39 mmの円筒形状にして、その中を水素原子が通過できるようにした。水素解離器の出口では、水素原子、水素分子は0.1 Torr以上の真空度で存在している。このため、フィラメント温度が水素原子の温度よりも高い場合には、Appendix Fに示すように、フィラメントを通過する水素原子はフィラメント温度まで加熱されると考えてよい。そして、ターゲット表面で入射原子のエネルギーが保存されているものと仮定して、入射速度に比例して表面からの離脱速度も増加するとみなした。一方、フィラメントを加熱しない場合には、フィラメントはプラズマ加熱され、水素原子線の温度に近い値になると仮定した。

水素原子の温度を変化させていったときの生成効率の変化を図5-9に示す。図では、生成効率の変化はフィラメントを加熱しないときの負水素イオンの生成量で規格化した値で示してある。横軸のフィラメントの温度は光高温計を使用して測定した。この結果からわかるように、フィラメントの温度が約1250 Kより高くなると生成効率も線形的に増加した。これは、水素原子線の温度が水素解離器中において、プラズマ状態ですでに1250 Kぐらいに加熱されていることを示している。

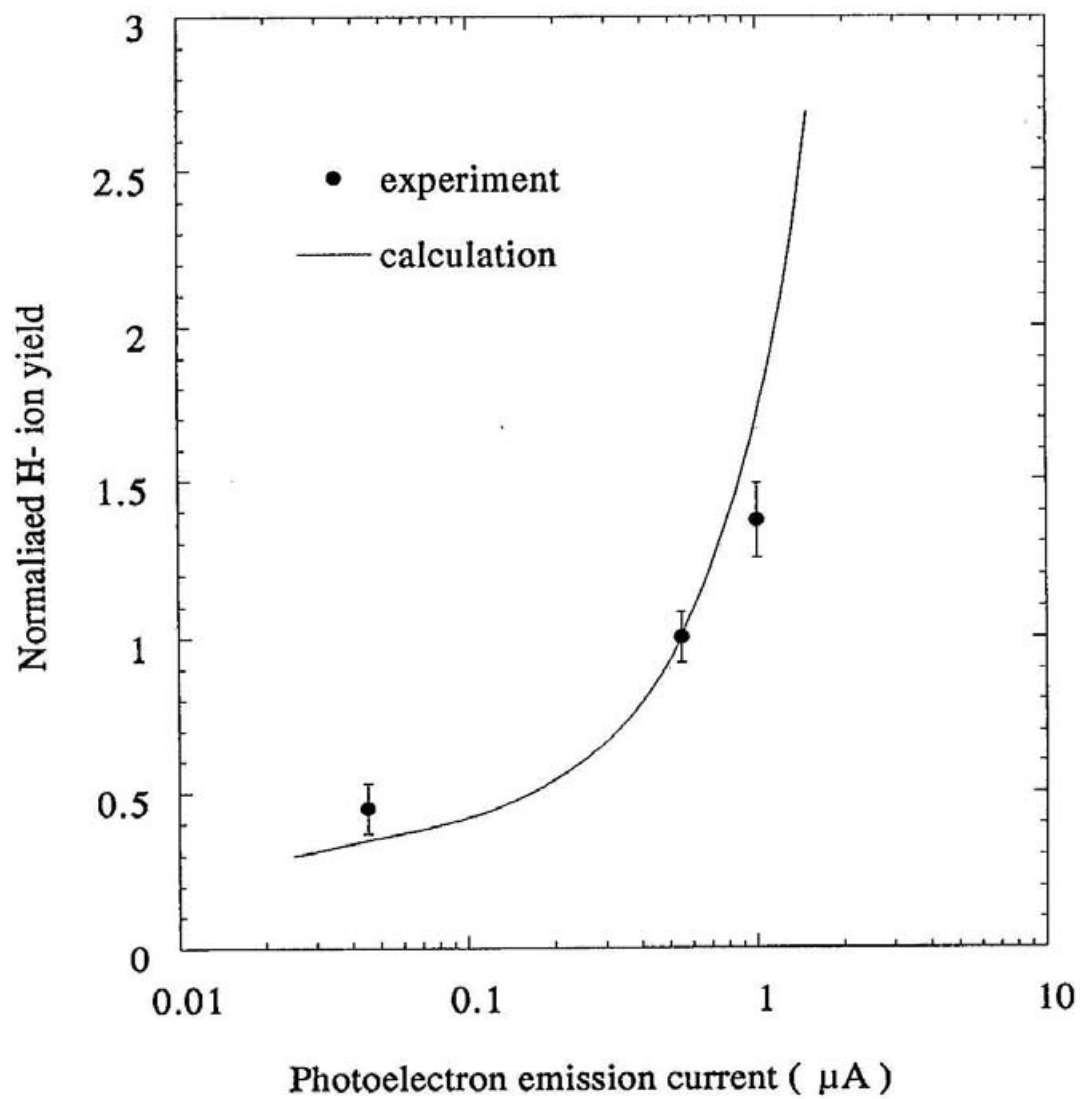


図5-7 負水素イオン生成量の仕事関数依存性

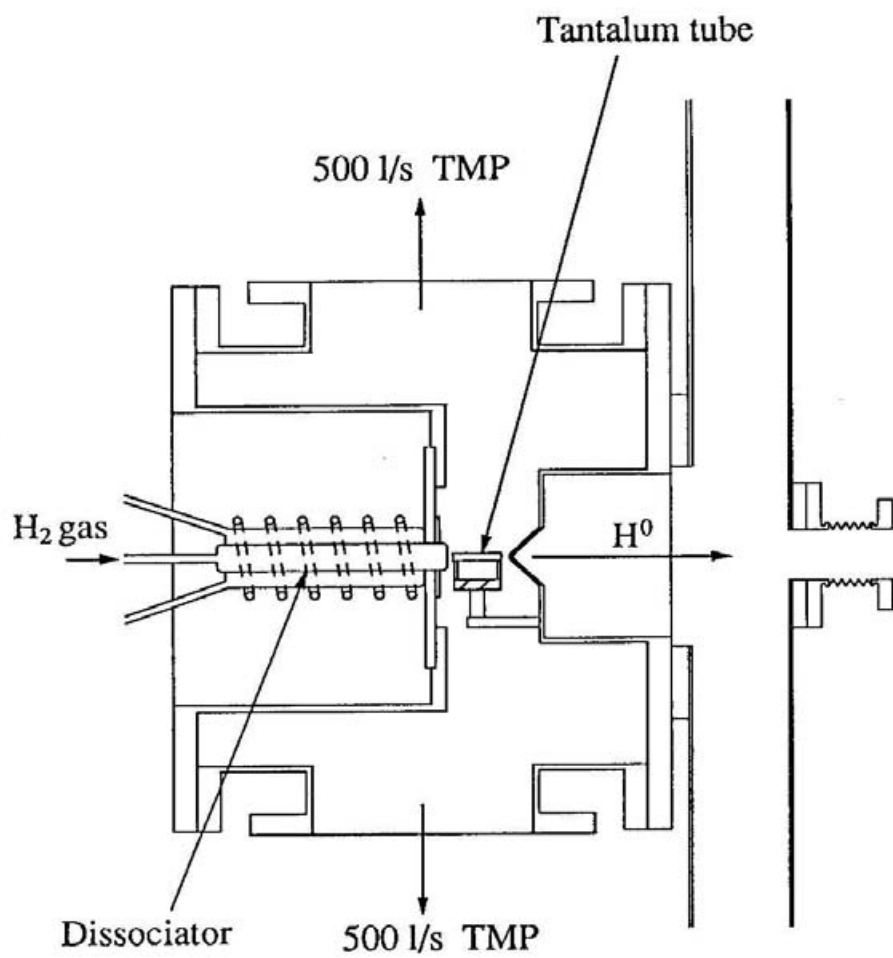


図 5 - 8 水素原子線の加熱方法の概略図



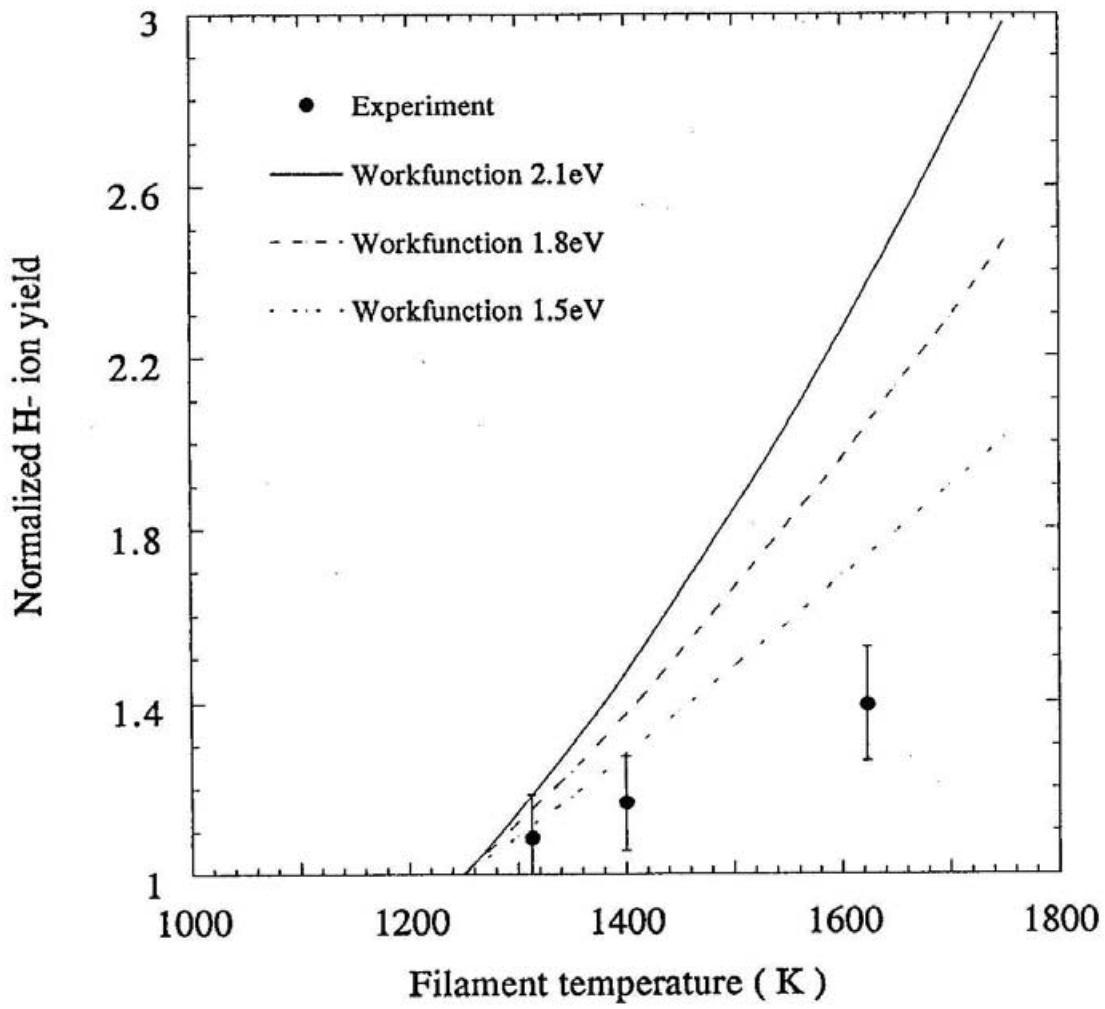


図5-9 負水素イオン生成量の速度依存性

### 5.1.3 実験値と理論値の比較

本節では、4章で述べた生成効率式によって負水素イオンの生成効率を計算し、実験結果との比較を行う。

水素原子線は、Maxwell分布の速度分布でターゲット表面に入射すると考える。この場合、平均の生成効率は次式から求めることができる。

$$\bar{\beta} = \frac{\int_0^{\infty} v f(v) \beta(\phi, v) dv}{\int_0^{\infty} v f(v) dv} \quad (5.8)$$

ここで、 $f(v)$  は速度分布であり、 $\beta(\phi, v)$  は(4.28)式で表わされる負水素イオン生成効率である。 $f(v)$  は次式で定義される。

$$f(v) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \frac{v^2}{v_m^3} \exp\left(-\frac{v^2}{v_m^2}\right)$$
$$v_m = \sqrt{\frac{2kT}{M}} \quad (5.9)$$

上式で、 $v_m$  は水素原子線の温度  $T$  から決まる最大確率速度である。

上式によって計算した結果として、水素原子の温度が  $1250 \text{ K}$  のときのターゲット表面上における水素原子線の速度分布を図5-10.aに示す。さらに、この速度分布に対して、仕事関数が  $2.1 \text{ eV}$  のターゲット表面における負水素イオン生成量を求めた結果を図5-10.bに示す。図からわかるように、速度分布のピーク速度の約2倍前後の速度の水素原子が負水素イオン生成に最も寄与していることがわかる。平均の生成効率は、図5-10.bに示される速度分布に対する生成効率を積分することにより求められる。計算の結果、仕事関数  $2.1 \text{ eV}$ 、水素原子線温度  $1250 \text{ K}$  に対して、負水素イオンの生成効率は  $1.1 \times 10^{-4}$  であり、オーダー的には実験値  $2.5 \times 10^{-4}$  とほぼ一致すると言える。

次に、負水素イオン生成効率の仕事関数に対する依存性と水素原子の速度に対する依存性について同様に比較を行った。式(5.8)において水素原子の温度を  $1250 \text{ K}$

に固定して、負水素イオンの生成効率の仕事関数に対する依存性を計算した結果を、実験結果と併せて、図5-7に実線で示してある。負水素イオンの生成効率は実験値の場合と同様に仕事関数が2.1 eVの時の計算値で規格化してある。図から明らかなように、実験値は計算値で予想される仕事関数の変化に対する負水素イオンの生成効率曲線とはほぼ一致している。

負水素イオン生成効率の水素原子の速度（温度）に対する依存性を計算した結果は、仕事関数が2.1 eV、1.8 eV、1.5 eVの3通りの場合について、実験値と同様に規格化して図5-9に実線と破線で示してある。この計算結果では、ターゲット表面の仕事関数が1.5 eVまで低下していたと仮定すると、実験値は計算値と比較的良くあっていると言える。しかしながら、Appendix Aの結果に基づいて実験時の仕事関数を推定すると2.1 eVぐらいであり、実験値と計算値の間には差が生じる。速度依存性について実験値と計算値が一致しない理由は明らかではない。しかしながら、速度依存性についての定性的な傾向としては、実験結果は理論と概ね良い一致を示していると言えよう。

以上の各実験結果と計算値との比較から、(4.28)式は、低エネルギー領域においても、表面から散乱していく水素原子による負水素イオンの生成効率の見積りに有効であると考えられる。

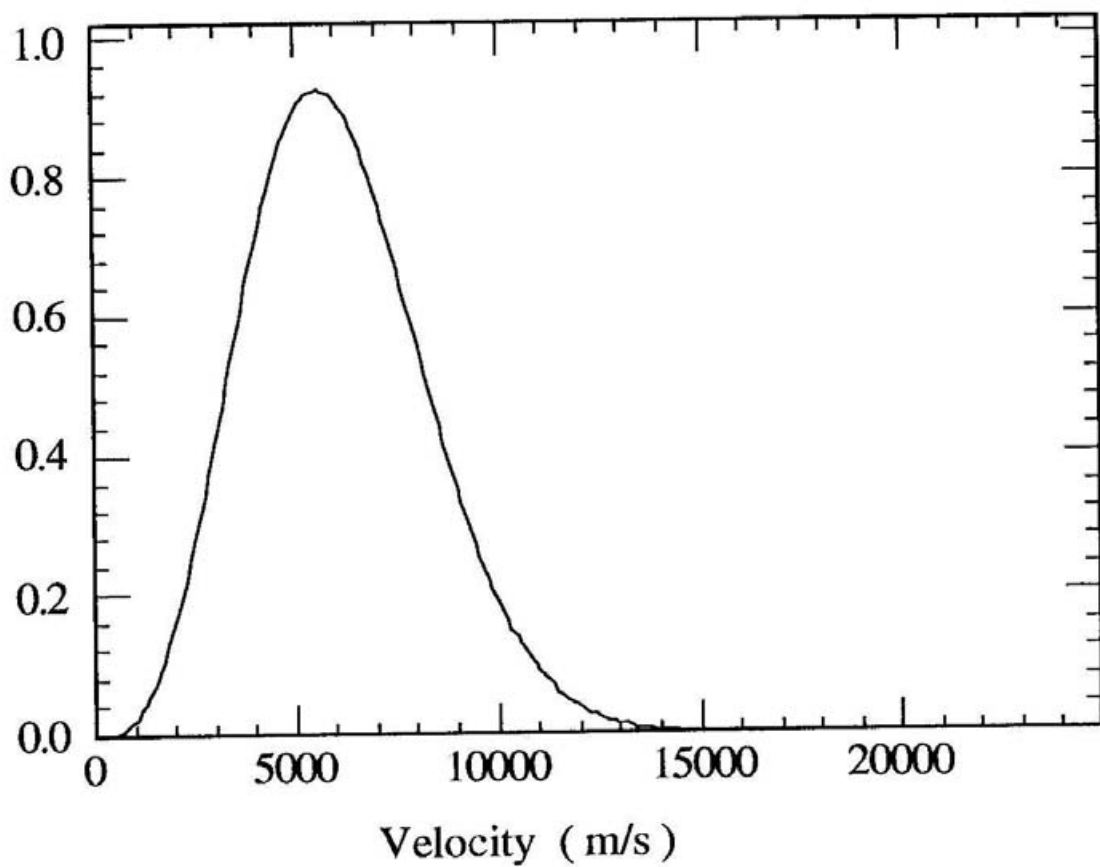


図 5 - 1 0 . a 水素原子線の速度分布の計算値  $[v f(v)]$   
( $\phi = 2.1\text{eV}$ ,  $T = 1250\text{K}$ )

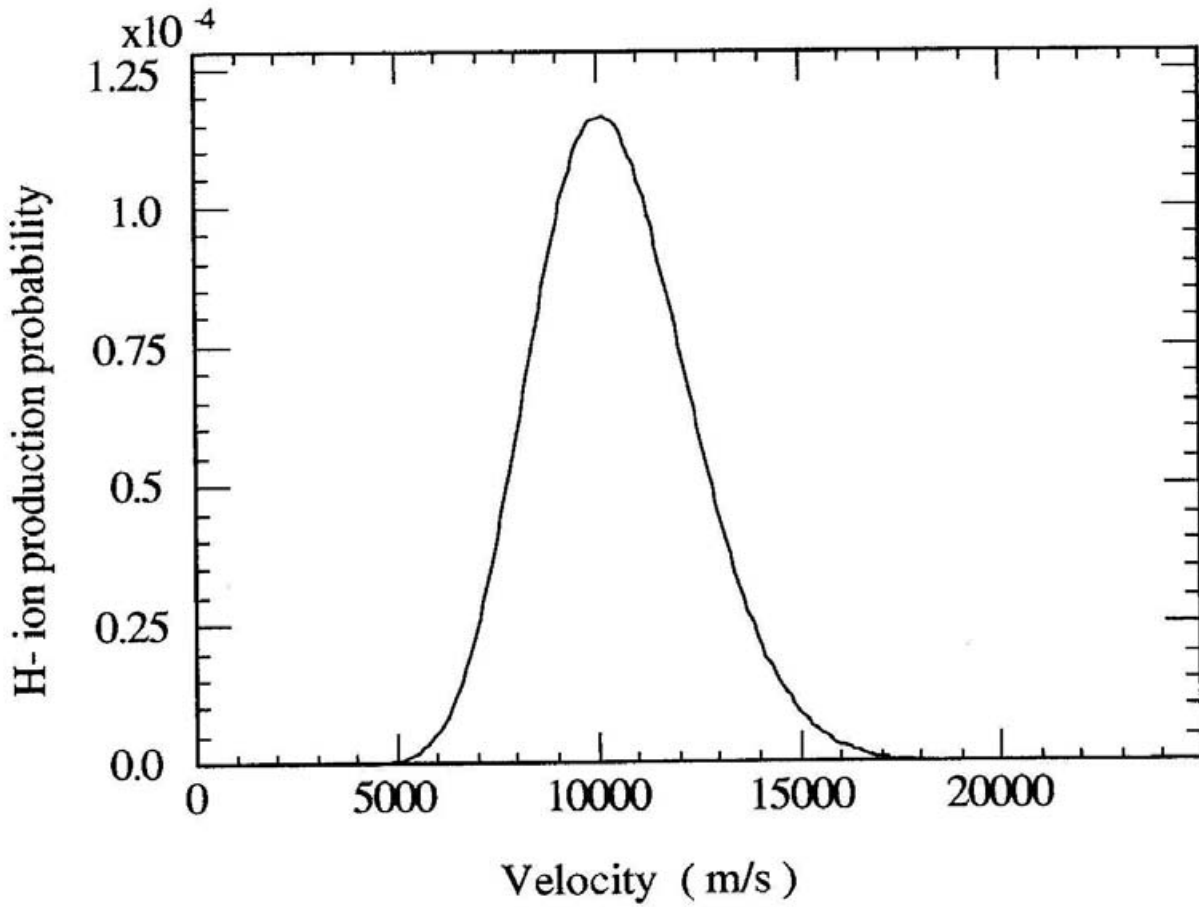


図5-10.b 水素原子線の速度分布を考慮した負水素イオン生成効率  
 $[v f(v) \beta(\phi, v)]$   
 ( $\phi = 2.1\text{eV}$ ,  $T = 1250\text{K}$ )

## 5.2 低エネルギーの正の水素イオンからの負水素イオン生成実験

### 5.2.1 実験装置

正の水素イオンからの負水素イオン生成効率を測定する実験装置の概要を図5-1-1に示す。この実験装置の基本的構成は、図5-1で示した水素原子からの負水素イオン生成効率を測定した実験装置と同じであり、水素解離器の代わりに水素イオン源を取り付けて水素イオンを生成した。生成した負水素イオンは、偏向磁場中を通して質量分析した後に、測定器へと導いた。以下、主要部分の説明を行う。

#### 1) 水素イオン源

水素イオン源は、2章で説明した小型の体積生成型の負水素イオン源を使用し、磁気フィルターを外して正の水素イオン源として運転した。このイオン源の実験時の運転パラメーターは表5-1に示す。引き出した水素イオンは、引き出し電極の後に設置したExB質量分析器によって、 $H^+$ 、 $H_2^+$ および $H_3^+$ の各イオンを分離させ、個々にターゲット表面に入射させた。水素イオンビームの加速電圧は、ExB質量分析器で質量分離する必要から-100Vにした。負水素イオンの加速は、負水素イオン生成部と測定系を接地して、イオン源本体に正の電圧を印加して行った。図5-1-2に、ExB質量分析器によって水素イオンを分離した結果を、ExB質量分析器の磁場に対するターゲット表面に入射する水素イオンビームの電流値として示す。

引き出し電極は、2枚構造として、1枚目に-600Vを印加して2枚目を接地することにより、ビームの収束性を向上させた。また、ExB質量分析器の前後に口径10mmのスリットを取付けて、ビームを絞り込むとともに軸に平行なビームにした。真空排気系は図5-1に示した装置と同じである。

表5-1 水素イオン源運転パラメーター

フィラメント電流	4.4 A	引き出し電極口径	7.5 mm
アーク電圧	5.7 V	引き出し電圧	100 V
アーク電流	5 A	水素ガス流量	5 CCM

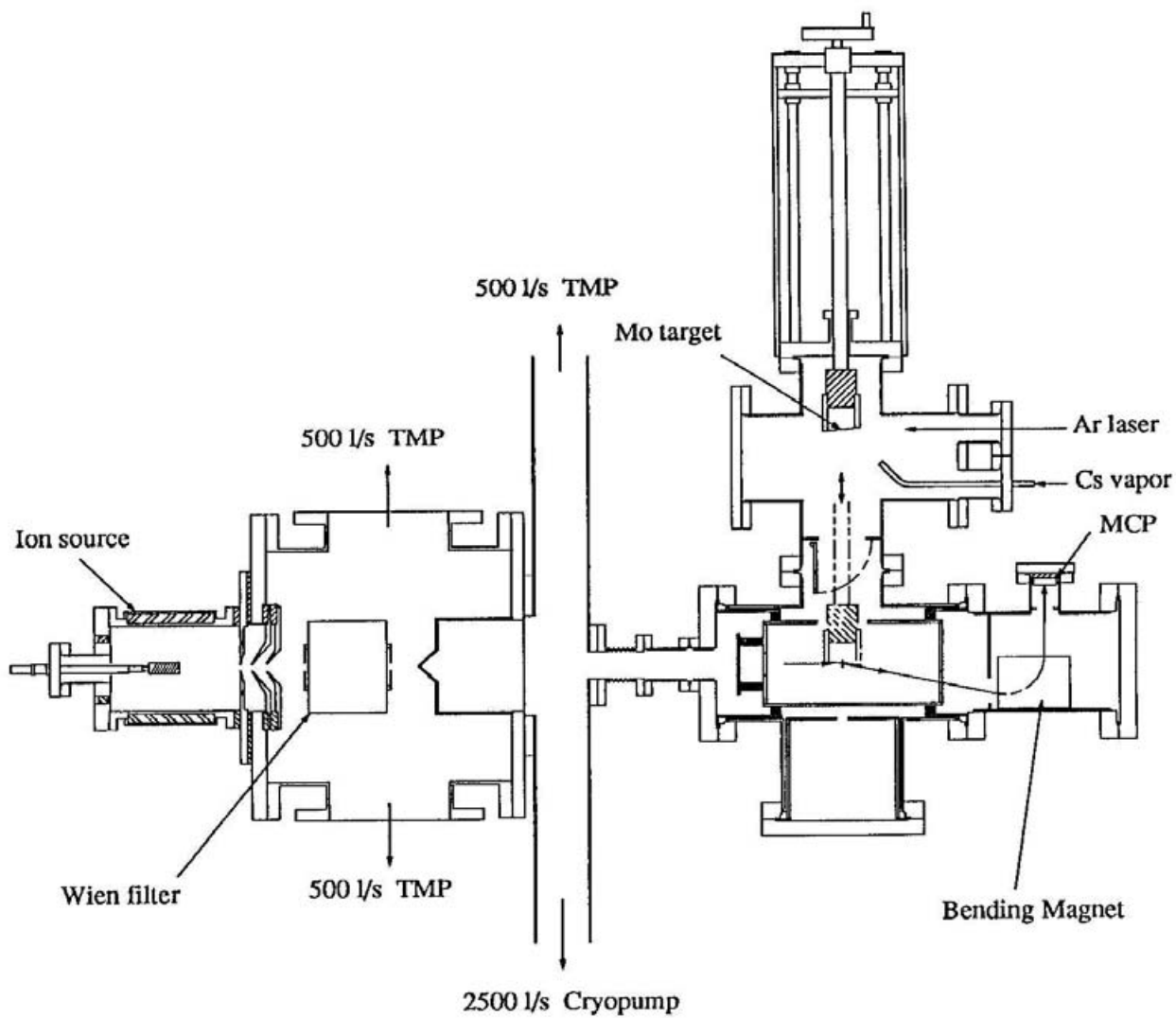


図 5 - 1 1 正の水素イオンからの負水素イオン生成効率を測定する  
実験装置の概略図

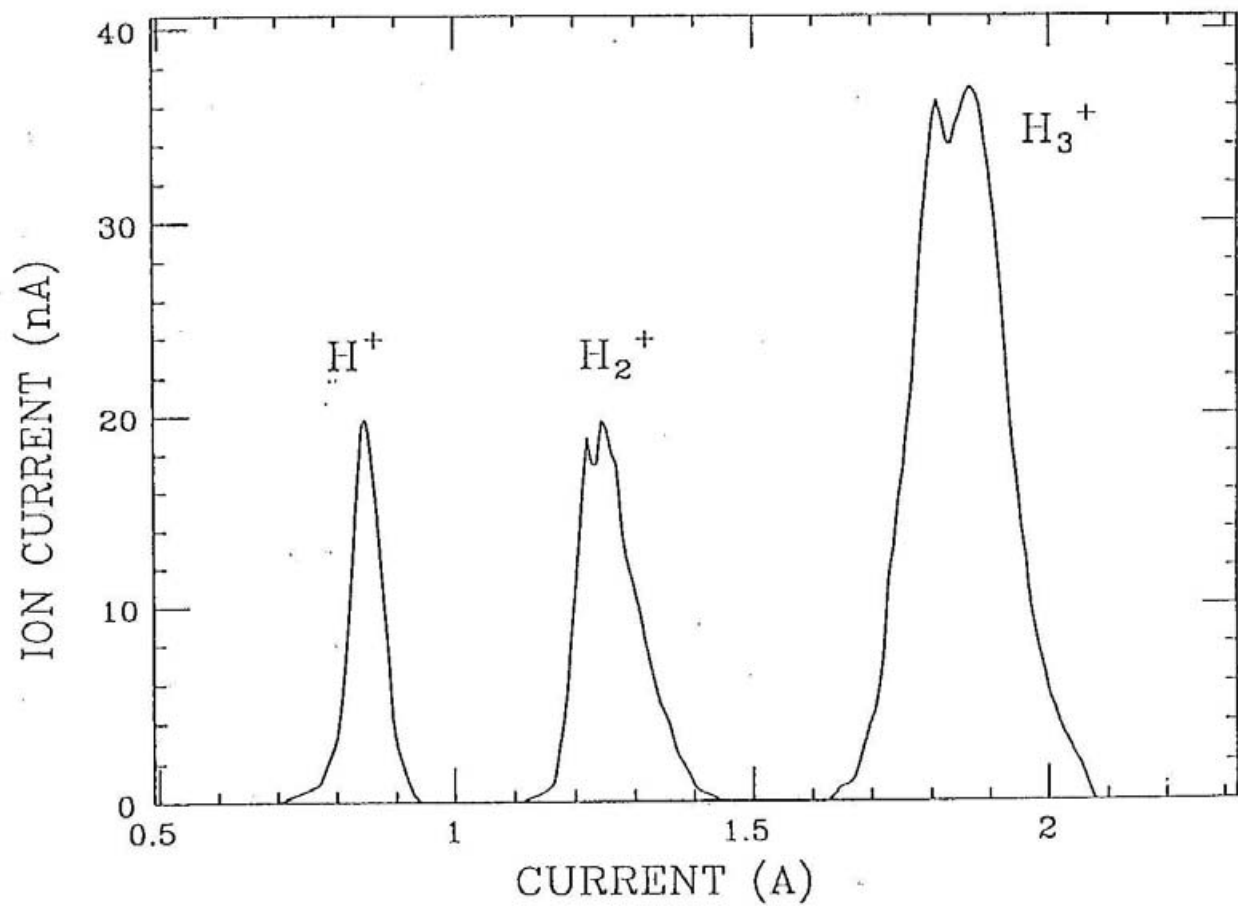


図5-12 質量分離後にターゲットで測定した水素イオン電流値



## 2) 負水素イオン生成部

負水素イオンは100eVのエネルギーでターゲット表面に入射する。このエネルギーは、体積生成型の負水素イオン源におけるプラズマ中の水素イオンのエネルギーに比べるとかなり高い。負水素イオンの生成効率は表面から散乱する原子（イオン）の表面に垂直な方向の速度成分に依存する。このため、表面に対する垂直方向の入射エネルギーを体積生成型の負水素イオン源のプラズマポテンシャルに近づけるために、ビーム軸に対して6度の角度でターゲットを設置した。この角度では、水素イオンは表面に垂直な方向のエネルギーが約1eVでターゲットに入射する。H<sup>+</sup>イオンの場合は、この時の表面に垂直な方向の速度は $1.4 \times 10^4$  m/sである。セシウムを吸着させる準備室、セシウム供給系、ターゲット駆動機構は水素原子を当てて負水素イオンを生成させる実験の時と同じ装置を使用した。

## 3) 負水素イオン測定系

生成した負水素イオンは、ターゲットに対して6度の反射角のビーム軸上に設置した口径10mmのスリットを通した後に、偏向磁場によって質量分析して検出器へと導いた。負水素イオンの検出には、マイクロチャンネルプレート(MCP)(F2222-21、浜松ホトニクス製)を使用した。MCPによる負水素イオンの測定方法は、図5-2と基本的には同じである。MCPで検出した負水素イオンの粒子数は、パルスカウンターによってパルス数として測定した。

### 5.2.2 負水素イオン生成効率の測定

セシウムを吸着させたターゲット表面にH<sup>+</sup>イオンを当てたときの負水素イオンの生成量の測定値を図5-13に示す。また、セシウムを吸着させたターゲット表面にH<sub>3</sub><sup>+</sup>イオンを当てたときの負水素イオンの生成量の測定値は、図5-14に示す。図には質量分析用の偏向磁石の電流値に対して負水素イオン生成量を求めた結果を示してある。負水素イオンの生成量は20秒間に検出したパルス数で示してある。図中の実線は測定値に対して最小二乗法によって求めた分布曲線である。分布曲線は正規分布を仮定した。実験時のターゲット表面の仕事関数は、光電子の電流値の測定結果から約2.1eVであ

った。

$H^+$ イオンと $H_3^+$ イオンからは、これらの図に示すように負水素イオン生成量のピークを検出することができたが、 $H_2^+$ イオンからはピークを検出することができなかった。したがって、 $H_2^+$ イオンからの負水素イオン生成量は、 $H^+$ イオンや $H_3^+$ イオンからの負水素イオン生成量に比べると少ないと考えられる。この理由は、 $H_2^+$ イオンが低いエネルギーで表面に当たる場合には、オージェ中性化過程によって表面で安定な水素分子になるだけであり、解離して負水素イオンになるまでに至らないためであると考えられる。

$H^+$ イオンに対する生成効率 $\beta_1$ と $H_3^+$ イオンに対する生成効率 $\beta_3$ は次式で関係づけられる。

$$\beta_1 / \beta_3 = \left( \frac{n_{H^+}}{I_{H^+}} \right)^2 / \left( \frac{n_{H_3^+}}{I_{H_3^+}} \right)^2 \quad (5.10)$$

ここで、 $n_{H^+}$ と $n_{H_3^+}$ は、それぞれ、 $H^+$ イオンと $H_3^+$ イオンをターゲットに当てたときにMCPで検出した負水素イオンの粒子数であり、 $I_{H^+}$ および $I_{H_3^+}$ は、その時にそれぞれターゲットで測定した $H^+$ イオンと $H_3^+$ イオンの電流値である。 $I_{H^+}$ と $I_{H_3^+}$ の値は、図5-12に示した結果から求められる。実験結果から(5.10)式によって計算した負水素イオンの生成効率比は、 $\beta_1 : \beta_3 = 1 : 2.1$ となった。計算に際しては、各図において横軸に対する積分値を求めて検出量とした。

負水素イオンの生成効率の絶対量は、セシウムが吸着していない表面状態の時に反射する水素の正イオンの粒子数を測定することにより求めた。セシウムが吸着していない状態では、ターゲット表面に入射する水素イオンのほとんどはオージェ効果によって中性化される。負水素イオンになる量は無視できる。しかし、水素イオンは100%中性化されるわけではなく、その一部は正イオンのままで反射する。 $H^+$ イオンをターゲットに入射させた時に、正イオンのままで反射していく場合と負水素イオンになって反射していく場合では、反射するイオンは電荷の極性が異なるだけで測定系に対する立体角は同じである。この時、負水素イオンの生成効率は次式で定義することができる。

$$\beta_1 = \frac{n_{H^+} \cdot (1 - \gamma)}{n_{H^+}} \quad (5.11)$$

ここで、 $n_{H^+}$ はセシウムが吸着していない時にターゲット表面で反射してMCPで測定された $H^+$ イオンの粒子数である。また、 $\gamma$ はオージェ中性化効率である。オージェ中

性化効率は、Snowdonらによってモリブデン表面に入射する $H^+$ イオンに対する計算値が報告されている<sup>[44]</sup>。本実験の入射エネルギーでは、約0.97である。セシウムが吸着していない状態で、 $H^+$ イオンをターゲット表面に入射させて、反射する $H^+$ イオンを測定した結果は図5-15に示す。以上の結果から、負水素イオンの生成効率は次のように求められた。

$$\beta_1 = 1.4 \times 10^{-2}, \quad \beta_3 = 2.9 \times 10^{-2}$$

### 5.2.3 実験値と理論値との比較

セシウムを吸着させたターゲット表面に水素イオンが入射する場合、ターゲット表面に入射する行程で、水素イオンはオージェ中性化過程によってほとんど中性化される。そして、水素原子の場合と同様に、表面上で負水素イオンと中性の水素原子が混在する状態になり、表面から反射して離れていく行程でその一部が負水素イオンとして残る。したがって、 $H^+$ イオンに対しても、負水素イオンの生成効率は水素原子に対する場合と同様に(4.28)式で見積ることができる。この実験では、水素イオンはイオン源から加速して引き出している。また、図5-13からわかるように、 $H^+$ イオンから生成した負水素イオンのエネルギー分布幅が狭いことから、計算では速度分布を考慮する必要はない。したがって、水素イオンのターゲット表面に対する垂直方向のエネルギーが1eVで、表面の仕事関数が2.1eVの場合には、 $H^+$ イオンからの負水素イオン生成効率は $\sim 2 \times 10^{-2}$ となる。この値は実験値 $1.4 \times 10^{-2}$ とほぼ一致する。

$H_3^+$ イオンからの負水素イオン生成効率を計算するためには次の仮定を行う。 $H_3^+$ イオンは表面で、 $H_3^+ + e \rightarrow H_2 + H$ の解離反応を起こして散乱する。そして、水素原子に電子が付着して負水素イオンになるとする。この時、質量に比例してエネルギーが分配されるとする。したがって、負水素イオンは0.33eVのエネルギーで表面から離脱するとする。この場合、 $H_3^+$ から生成した負水素イオンの速度は、 $H^+$ イオンから生成した負水素イオンの速度の約0.58倍である。この仮定で負水素イオン生成効率を計算すると、 $1.4 \times 10^{-3}$ になる。これは実験値の約1/20である。この誤差の原因としては、負水素イオン生成過程が上述のような簡単な過程でないためと考えられるが、結果としては、 $H_3^+$ イオンに対しては(4.28)式は適用できないと言える。

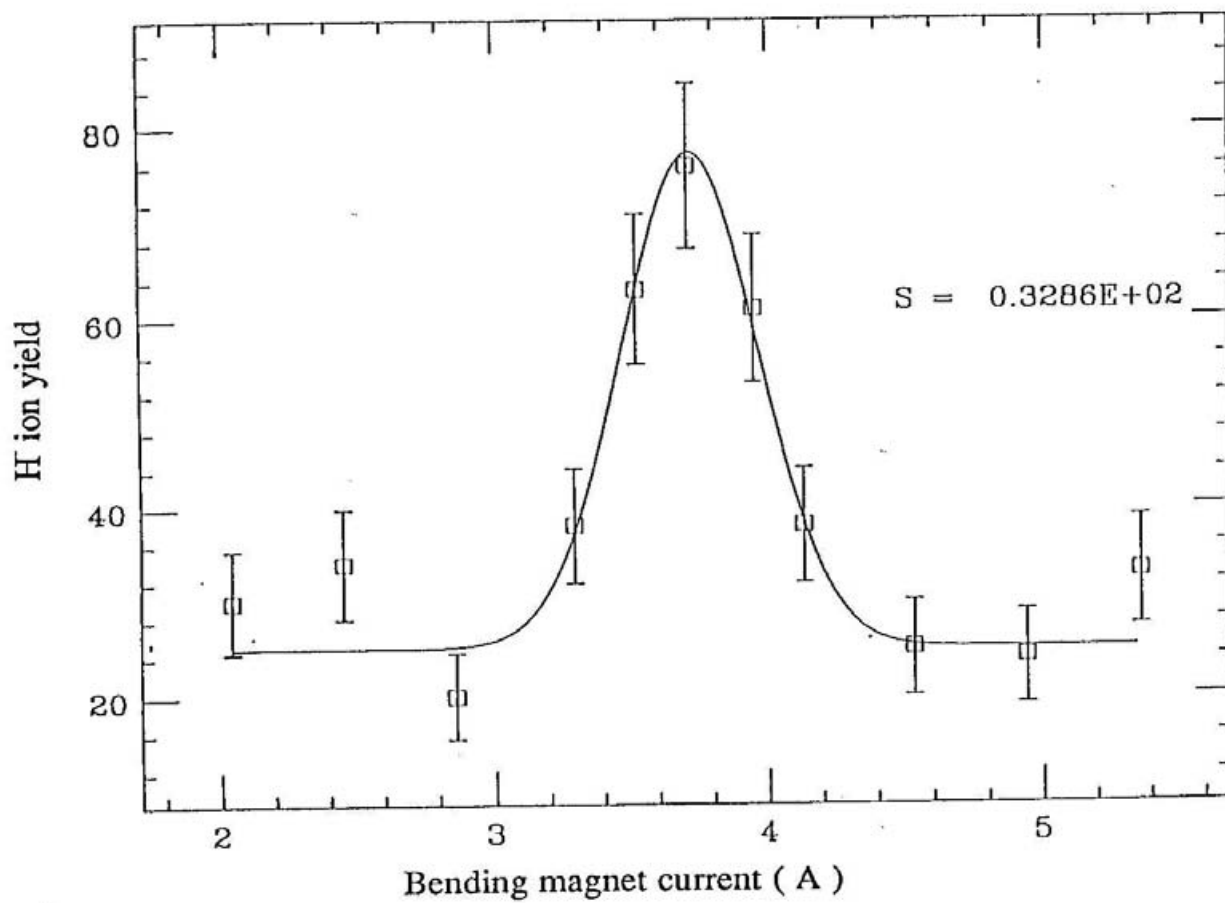


図5-13  $H^+$ イオンから生成した負水素イオンのカウント数

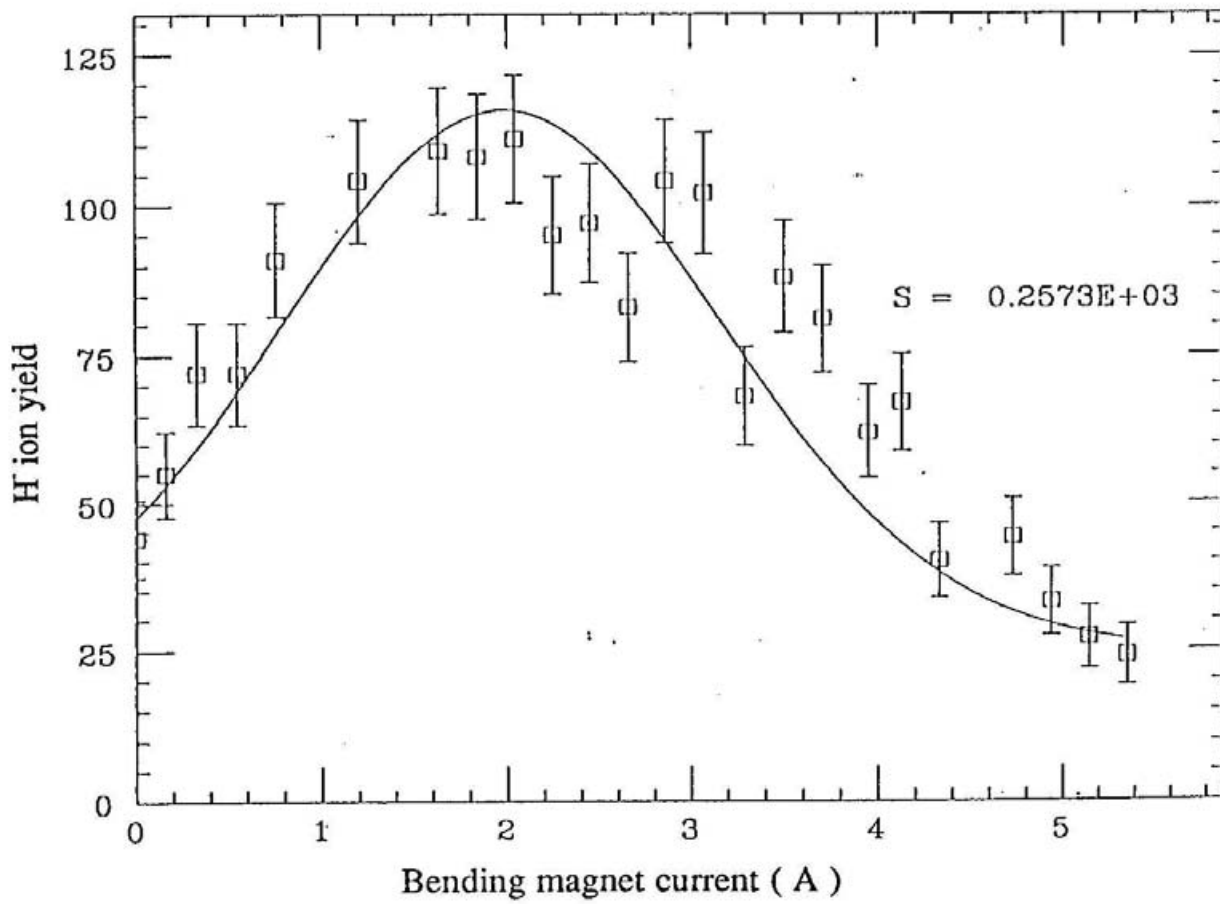


図5-14  $H_3^+$ イオンから生成した負水素イオンのカウント数

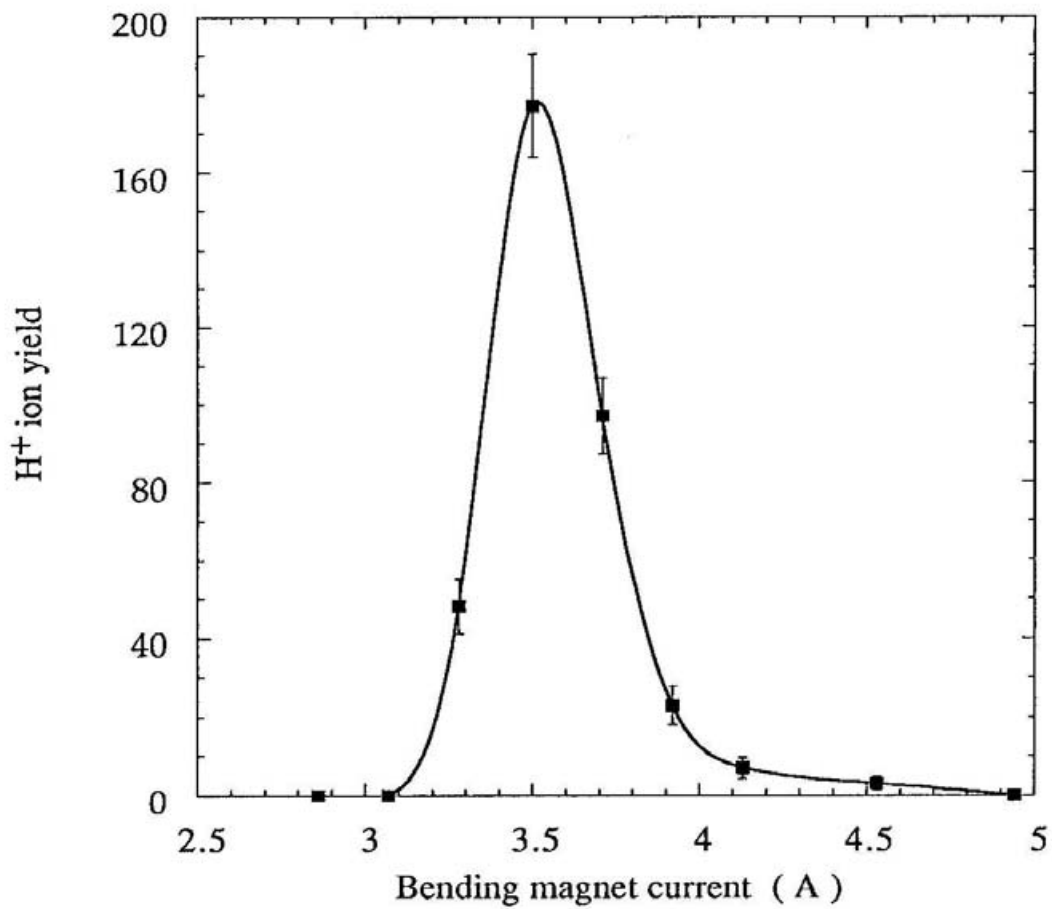


図5-15 セシウム吸着のないターゲット表面で反射したH<sup>+</sup>イオンのカウント数

### 5.3 体積生成型の負水素イオン源におけるセシウム効果に対する評価

5.1 および 5.2 の実験結果から、体積生成型の負水素イオン源中においてセシウム注入時に  $H^0$  原子、 $H^+$  および  $H_3^+$  イオンによってプラズマ電極表面で生成される負水素イオンの量を評価できる。ただし、ここでの評価では、プラズマ電極表面の仕事関数はセシウムが単原子層以上吸着していると考え、 $2.1 \text{ eV}$  とした。また、体積生成型の負水素イオン源中の水素原子、水素イオンの密度、エネルギーは、以下の値をとるものとして計算した。

水素原子密度	$1 \times 10^{14} \text{ atoms / cm}^3$ <sup>[39]</sup>
水素原子温度	$0.5 \text{ eV}$ <sup>[38]</sup>
$H^+$ イオン密度	$5 \times 10^{11} \text{ ions / cm}^3$
$H^+$ イオンプラズマポテンシャル	$1 \text{ eV}$
$H_3^+$ イオン密度	$5 \times 10^{11} \text{ ions / cm}^3$
$H_3^+$ イオンプラズマポテンシャル	$1 \text{ eV}$

このうち、水素イオンの密度はプラズマ中の電子密度 ( $\sim 10^{12} \text{ electrons / cm}^3$ ) と同じであるとして設定した。水素原子に対して負水素イオンの生成効率を計算すると、(4.28) 式で示される速度 (温度) 依存性に対する関係と  $1250 \text{ K}$  のときの実験結果から、 $\beta = 1.3 \times 10^{-2}$  となる。ただし、水素原子は電極に対して垂直に入射し、垂直に反射してくるものとする。この生成効率自体は、それほど高い値ではない。しかしながら、水素原子密度は  $1 \times 10^{14} \text{ atoms / cm}^3$  と大きい。水素原子の密度を  $\rho$ 、速度を  $v$  として、負水素イオン電流値  $I$  を  $I = \beta \rho v$  で計算すると、 $I \sim 200 \text{ mA / cm}^2$  となる。もちろん、生成された負水素イオンはプラズマ中で何割かは消滅することを考慮しなければならない。また、プラズマ電極表面で生成された負水素イオンがすべてビームとして引き出されるわけではない。しかしながら、それらを考慮しても、 $200 \text{ mA / cm}^2$  の電流値は極めて大きな値である。したがって、水素原子による負水素イオンの表面生成によってビーム強度が増加することは十分に考えられる。

次に、水素イオンに対して同様の評価を行う。体積生成型の負水素イオン源中の水素イオンの密度は水素原子に比べると小さい。このため、プラズマ電極表面における負水素イオン生成量は、電流値に換算して、 $H^+$  イオンの場合で  $1.5 \text{ mA / cm}^2$ 、 $H_3^+$  イオンの場合で  $1.9 \text{ mA / cm}^2$  ぐらいにしかならない。プラズマポテンシャルを  $10 \text{ eV}$  と仮定

しても、負水素イオン生成量はともに  $70 \text{ mA/cm}^2$  ぐらいであり、水素原子からの負水素イオンの生成量の約  $1/3$  である。したがって、水素イオンからの負水素イオン生成は水素原子ほどはビーム強度の増加に寄与していないと考えられる。



## 第6章 結論

本研究では、体積生成型の負水素イオン源に微量のセシウム蒸気を注入するとビーム強度が著しく増加する現象に注目し、セシウム注入型の高強度の体積生成型負水素イオン源を開発するとともに、セシウム注入時の負水素イオンの生成機構の解明を行った。

開発した小型の体積生成型負水素イオン源では、約20分間セシウム蒸気を注入することにより、約12mAの負水素イオンビーム電流を長時間安定して引き出すことができた。この値は、セシウム注入前に引き出したビーム電流値の約4倍である。さらに、アーク条件を変えることによって、最大で20mAのビーム電流を引き出すことができた。

このセシウム効果を解明して、負水素イオンの生成過程を把握するために次の2つの研究を行った。

- (1) 体積生成型の負水素イオン源を使用して、セシウム効果に寄与している負水素イオン生成過程を特定する研究
- (2) セシウムを吸着させたモリブデン表面から離脱する熱運動速度の水素原子 ( $H^0$ ) および低エネルギーの水素イオン ( $H^+$ ,  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ ) による負水素イオンの表面生成の研究

(1)の研究では、まずセシウム注入時のプラズマ電極の仕事関数の変化とビーム強度増加との相関関係を調べた。その結果、プラズマ電極にセシウムが吸着することによる表面の仕事関数の低下の時間的変化とビーム強度増加の時間的変化がほぼ一致することがわかった。つまり、イオン源の内面にセシウムが吸着することによって、ビーム強度の増加が引き起こされていることがわかった。

セシウムが吸着した金属表面における負水素イオン生成過程としては、この表面にあたるプラズマ粒子が、表面生成で直接負水素イオンになる過程と、励起水素分子になってこれが体積生成で負水素イオンになる過程が考えられた。そこで、次にこの2つの生成過程のどちらがビーム強度の増加に寄与しているかを調べた。このために、プラズマ電極に吸着したセシウムのみをアルゴンプラズマでスパッタして、負水素イオンビーム強度の変化を調べた。その結果、プラズマ電極のセシウムのみを除去するだけで、ビーム強度はセシウム吸着前の値に戻った。そして、プラズマ電極における負水素イオンの表面生成過程がセシウム効果の主因であることがわかった。この生成過程では、プラズマ中の水素原子や水素イオンが仕事関数の低下したプラズマ電極にあたって散乱する際に、表面との相互作用によってトンネル効果で出てくる金属中の電子を捕獲して負水素

イオンになる。

次に(2)の研究において、表面生成による負水素イオンの生成効率を直接測定することにより、セシウムの吸着したプラズマ電極表面における負水素イオン生成量を評価した。

まず、熱運動速度の水素原子からの表面生成による負水素イオン生成効率を求める実験を行った。実験では、水素解離器で発生させた約1250 Kの水素原子をセシウムの吸着したターゲット表面に入射させた。そして、ターゲットに入射している水素原子の粒子数とファラディカップで測定した負水素イオンの粒子数から、負水素イオン生成効率を求めた。測定の結果、仕事関数が2.1 eVのターゲット表面に水素原子を当てたときに、ファラディカップで $1 \times 10^9$  ions/sの負水素イオンが検出できた。また、ターゲット表面に入射している水素原子の量は、 $7.7 \times 10^{14}$  atoms/sであった。この結果から求められた水素原子からの負水素イオン生成効率は、 $2.5 \times 10^{-4}$ であった。この結果は、Blandinらによって提案された負水素イオンの生成効率式から得られる理論値 $1.1 \times 10^{-4}$ とオーダー的に一致する。

さらに、MCPを使用して、負水素イオン生成効率の表面の仕事関数に対する依存性と水素原子線の速度(温度)に対する依存性を測定した。その結果、負水素イオン生成効率の仕事関数に対する依存性の実験値と理論値はよく一致した。また、負水素イオン生成効率の水素原子線の速度に対する依存性の実験値と理論値は、定性的な傾向が一致した。これらの結果から、Blandinらによって提案された負水素イオンの生成効率式は、低エネルギー領域でも有効であることがわかった。

次に、低エネルギーの水素イオンからの表面生成による負水素イオンの生成効率を求める実験を行った。この実験では、イオン源で発生させた水素イオン( $H^+$ ,  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ )を表面に垂直な方向のエネルギーを約1 eVにしてターゲット表面に入射させ、生成する負水素イオンを測定して生成効率を求めた。実験の結果、水素イオンからの負水素イオンの生成効率は、仕事関数が2.1 eVの表面において、 $H^+$ イオンでは $1.4 \times 10^{-2}$ 、 $H_3^+$ イオンでは $2.9 \times 10^{-2}$ であった。しかしながら、 $H_2^+$ イオンについてはほとんど負水素イオンが測定されなかった。表面に入射するイオンのエネルギーが低いために、 $H_2^+$ イオンは入射時にオージェ電子を捕獲して安定な水素分子になるだけであるためと考えられる。

(2)の実験の結果をもとに、プラズマ電極表面で水素原子と水素イオンから生成される負水素イオン量を算出し、セシウム効果への寄与を評価した。体積生成型の負水素イオン源中の水素原子は、その存在量が $1 \times 10^{14}$  atoms/cm<sup>3</sup>以上と多量である。したが

って、水素原子からの負水素イオン生成量は生成効率が低いにもかかわらず、電流値に換算して $200\text{ mA/cm}^2$ もの値になることがわかった。この値は、負水素イオンのプラズマ中での消滅等を考慮しても、ビーム強度の増加を十分説明できる値である。一方、水素イオンからの負水素イオン生成量は、プラズマ中の水素イオンの密度が水素原子よりも2桁以上低いため、プラズマポテンシャル $1\text{ eV}$ では $\text{H}^+$ 、 $\text{H}_3^+$ イオンとも $2\text{ mA/cm}^2$ 以下である。プラズマポテンシャルを $10\text{ eV}$ と仮定しても、 $70\text{ mA/cm}^2$ ぐらいにしかない。したがって、プラズマ電極表面で水素イオンから生成される負水素イオンの量は、水素原子から生成される量ほどはビーム強度の増加に寄与しない。この結果、セシウム注入時にビーム強度が増加する原因は、セシウムが吸着することによって仕事関数が低下したプラズマ電極表面で、この表面にあたるプラズマ中の水素原子が表面生成で負水素イオンになるためであると結論づけられる。

本研究の結果から、体積生成型の負水素イオン源の高強度化の方法として、次のようなことが考えられる。負水素イオンのプラズマ中における平均自由行程を考慮すると、ビーム強度の増加には、プラズマ電極表面のビーム引き出し孔の近傍で生成される負水素イオンの寄与が大きいと考えられる。したがって、より高強度の負水素ビームを引き出すためには、引き出し孔近傍の表面で生成された負水素イオンをいかに有効に引き出すかがポイントである。この方法の1つとして、引き出し孔の口径を小さくして多孔形状にする方法が考えられる。多孔形状では、引き出し孔近傍のセシウム吸着面積が大きくなる。このため、負水素イオン生成量が増加するとともに、引き出し効率の向上も計れることが期待される。また、プラズマ電極のみにセシウムを吸着させる構造とすることも、セシウムの消費量がさらに低減できるために、体積生成型の負水素イオン源の長所を活かす意味で有効であると考えられる。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり、多大な御指導と御助言を戴いた、高エネルギー物理学研究所、木原 元央教授、森 義治助教授、ならびに、本研究の実験をはじめとして多岐にわたり、御指導と御協力を戴いた、高エネルギー物理学研究所 高木 昭助手、上野 彰助手、池上 清氏、久保田 親氏に心から感謝致します。また、実験を行うにあたり、多大な御援助を戴いた、高エネルギー物理学研究所 菅原 寛孝所長、木村 嘉孝教授に深く感謝致します。

体積生成負水素イオン源の実験に際し、御指導と御協力を賜った、TRIUMF (Canada) Dick Yuan博士に深く感謝致します。また、本研究の実験を行うにあたり、協力して下さい、総合研究大学院大学加速器科学専攻 金正 倫計氏に、心より感謝致します。

本研究を行う機会を与えて戴いた、(株)東芝京浜事業所 伊藤 進技監、森田 元康部長、中野 正允主幹 ならびに 機器装置部開発機器担当の皆様、に深く感謝致します。

最後に、本研究の遂行にあたり様々な形で御世話になった、総合研究大学院大学加速器科学専攻の皆様、高エネルギー物理学研究所の職員の皆様に心から御礼申し上げます。

## Appendix A

### 光電子放出を利用した仕事関数の測定

この測定方法は、Fowlerの提案した理論<sup>[45]</sup>に基づいている。金属表面に  $h\nu$  のエネルギーの光子が入射すると、金属中の電子の運動エネルギーが増加する。表面に垂直な電子の運動エネルギーが表面のポテンシャル障壁よりも高くなると、電子は真空中に飛び出すと仮定する。この場合、真空中に飛び出す金属中の単位体積あたりの電子数は次式で与えられる。

$$N = \int_{\frac{1}{2} m u^2 = \chi_0 - h\nu}^{\infty} n(u) du \quad (\text{A.1})$$

ここで、 $u$  は金属中の電子の表面に垂直な速度成分であり、 $n(u) du$  は  $u - u + du$  の範囲の速度成分をもつ単位体積あたりの電子数である。また、 $\chi_0$  はポテンシャル障壁の高さであり、電子のエネルギー準位と真空準位のエネルギー差である。

金属中の電子分布がフェルミ-ディラック統計に従うとすれば、 $n(u) du$  は次式で表わされる。

$$n(u) du = \frac{4\pi kT}{m} \left(\frac{m}{h}\right)^3 \log \left( 1 + \exp \left( \frac{\epsilon_f - \frac{1}{2} m u^2}{kT} \right) \right) du \quad (\text{A.2})$$

ここで、 $\epsilon_f$  はフェルミレベルである。

(A.2) 式を (A.1) 式に代入して、さらに

$$y = [mu^2/2 - (\chi_0 - h\nu)]/kT$$

とにおいて、積分領域を  $(0, \infty)$  にして積分を行なうことにより、 $N$  は次式のようになる。

$$N \cong \frac{2\sqrt{2}\pi}{h^3} \frac{k^2 T^2}{(\chi_0 - h\nu)^{1/2}} \log \left( 1 + \exp \left( -y + \frac{h\nu - \phi}{kT} \right) \right) dy \quad (\text{A.3})$$

ただし、 $\phi$  は仕事関数であり、 $\phi = \chi_0 - \epsilon_f$  で定義される。

(A.3) 式を展開して、 $T \rightarrow 0$  とすると

$$N \propto \frac{(h\nu - \phi)^2}{(\chi_0 - h\nu)^{1/2}} \quad h\nu > \phi$$

$$N = 0 \quad h\nu < \phi \quad (\text{A.4})$$

の関係が求められる。したがって、入射エネルギーが一定とすると、表面より真空中に放出される光電子電流値  $Y$  は、

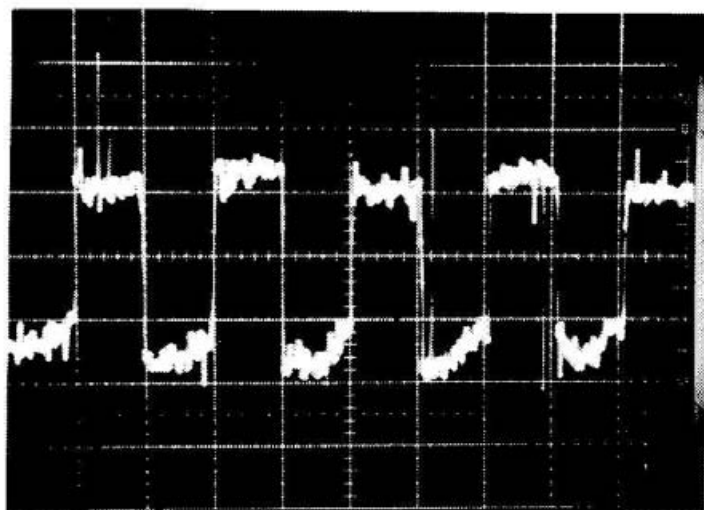
$$Y = C(h\nu - \phi)^2 \quad h\nu > \phi$$

$$Y = 0 \quad h\nu < \phi \quad (\text{A.5})$$

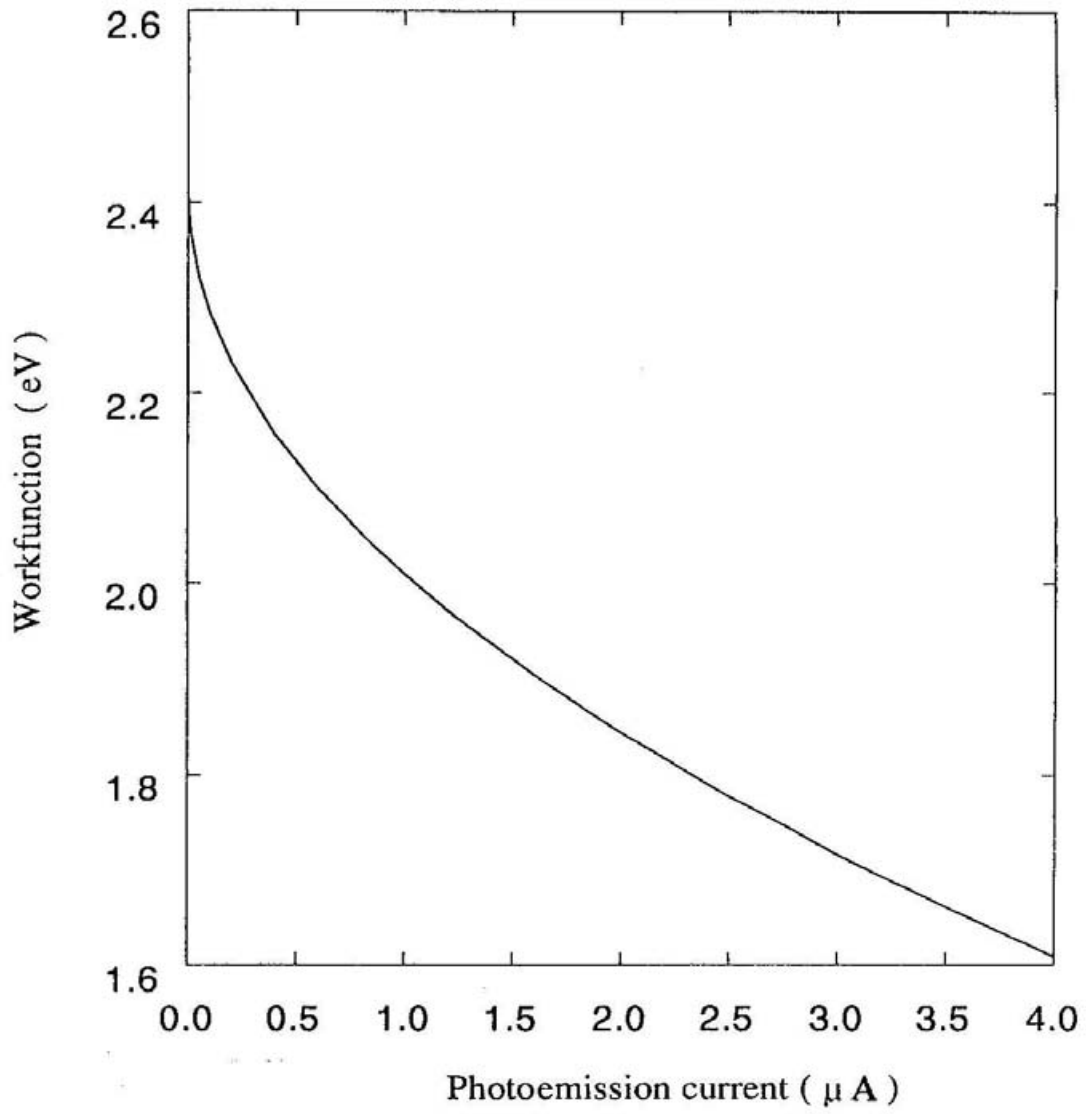
で計算することができる。ここで、 $C$  は比例定数である。

比例定数  $C$  は実験から求めることができる。モリブデン表面にセシウムが単原子層以上吸着している状態の仕事関数は、 $2.1 \text{ eV}$  である<sup>[23]</sup>。したがって、この時に放出される光電子の電流値を図3-5に示した方法で測定することにより、比例定数を求めることができる。図A-1は、図5-1に示した実験装置において、セシウムが十分に吸着した状態で測定した光電子電流の波形である。この場合、セシウムの注入時間と光電子電流値が安定したことおよび覗き窓からの目視によって、セシウムが十分に付着したと判断した。この結果では、 $\phi = 2.1 \text{ eV}$  のとき、 $Y = 0.6 \mu\text{A}$  である。一方、入射エネルギーはアルゴンレーザーの波長  $\lambda = 514.5 \text{ nm}$  から、 $h\nu = 2.41 \text{ eV}$  である。したがって、 $\phi = 2.41 \text{ eV}$  のときに、 $Y = 0 \text{ A}$  である。この2つの値から、比例定数は  $C = 124.9$  となる。この値を使用して、(A.5) によって計算した光電子電流値と仕事関数の関係を図A-2に示す。

縦軸 0.25  $\mu\text{A}$  / div.  
横軸 5 ms / div.



図A-1 光電子電流波形 (セシウムが単原子層以上吸着した状態)



図A-2 光電子電流値に対する仕事関数



## Appendix B

### 準位シフトの計算の補足

(4.6) 式において

$$I = \int \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-2ar) dx dy \quad (\text{B.1})$$

の積分を計算し (4.8) 式を導く。

$\exp(-2ar)$  はフーリエ変換によって次式で関係づけられる。

$$\exp(-2ar) = \frac{1}{\pi^2} \int \int \int \frac{2a \exp(i\boldsymbol{\chi} \cdot \mathbf{r})}{(4a^2 + \chi^2)} d^3\boldsymbol{\chi}$$

これを (B.1) 式に代入すると、

$$I = \frac{1}{\pi^2} \int \int \left( \int \int \int \frac{2a \exp(i\boldsymbol{\chi} \cdot \mathbf{r})}{(4a^2 + \chi^2)} d^3\boldsymbol{\chi} \right) dx dy \quad (\text{B.2})$$

となる。  $\boldsymbol{\chi} \cdot \mathbf{r} = \chi_1 x + \chi_2 y + \chi_3 z$  であるから、(B.2) 式は次のようになる。

$$I = \frac{2a}{\pi^2} \int \int \int \frac{\exp(i\chi_3 z)}{(4a^2 + \chi^2)} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\chi_1 x) dx \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\chi_2 y) dy \quad (\text{B.3})$$

ディラックの $\delta$ 関数、

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i\chi_1 x) dx = 2\pi \delta(\chi_1)$$

の関係式から (B.3) 式は、以下のように整理できる。

$$I = 8a \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(i\chi_3 z)}{(4a^2 + \chi_3^2)} d\chi_3 \quad (\text{B.4})$$

この積分は留数定理によって、極  $\chi_3 = +2ia$  について次のように計算できる。

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(i\chi_3 z)}{(4a^2 + \chi_3^2)} d\chi_3 = \frac{\pi(1 + 2az)\exp(-2az)}{16a^3} \quad (\text{B.5})$$

したがって、 $z > 0$  に対しては極  $\chi_3 = +2ia$  について、 $z < 0$  に対しては極  $\chi_3 = -2ia$  についてそれぞれ計算することにより、 $I$  は次のようにまとめられる。

$$I = \frac{\pi(1 + 2a|z|)\exp(-2a|z|)}{2a^2} \quad (\text{B.6})$$

これを (4.6) 式に代入することにより、(4.8) 式が導かれる。

## Appendix C

### 1,s 波動関数に対する準位の拡大幅の計算式の導出

(4.14) 式から、(4.17) 式を導く。

$$T_{i,f} = \frac{2 k_3' a^{3/2} q^2}{4\pi\epsilon_0\sqrt{\pi}k_v L^{3/2}} \int_0^s \exp(ik_3\xi) \left[ \int \int_{-\infty}^{+\infty} \exp i(k_1x + k_2y) \frac{\exp(-ar)}{r} dx dy \right] dz \quad (4.14)$$

ここで、 $\exp(-2ar)$  はフーリエ変換によって次式で与えることができる。

$$\exp(-2ar) = \frac{1}{\pi^2} \int \int \int \frac{2a \exp(i\chi \cdot r)}{(4a^2 + \chi^2)} d^3\chi$$

上式を代入して展開すると、次のように書ける。

$$T_{i,f} = \frac{2 k_3' a^{3/2} q^2}{4\pi\epsilon_0\sqrt{\pi}k_v L^{3/2}} \int_0^s \exp(ik_3\xi) \times \frac{1}{2\pi^2} \int \int \int \int \int \frac{1}{a^2 + \chi^2} \exp i(k_1x + k_2y) \exp i(k_x x + k_y y + k_z z) dx dy dz \quad (C.1)$$

ここで、ディラックの $\delta$ 関数、

$$\int \exp i(k_1+k_x)x dx = 2\pi \delta(k_1+k_x)$$

を使用すると、次のようにまとめることができる。

$$T_{i,f} = \frac{2 k_3' a^{3/2} q^2}{4\pi\epsilon_0\sqrt{\pi}k_v L^{3/2}} \int_0^s \exp(ik_3\xi) \times 2 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp ik_z z}{a^2+k_1^2+k_2^2+k_3^2} dz \quad (C.2)$$

$F = a^2 + k_1^2 + k_2^2$  とおいて、 $|s| = z - |\xi|$  の関係を使用すると、次のようになる。

$$\begin{aligned}
T_{i,f} &= \frac{k_3' a^{3/2} q^2}{2\epsilon_0 \sqrt{\pi} k_v L^{3/2}} \int_0^s \exp(ik_3 \xi) \frac{\exp(-Fz)}{F} dz \\
&= \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \right) \frac{4\sqrt{\pi} k_3' a^{3/2} q^2 s \exp(-Fs)}{k_v L^{3/2} F} \quad (C.3)
\end{aligned}$$

この結果を (4.16) 式に代入して、さらに  $k_1^2 + k_2^2 = k'^2 \sin^2 \theta$ ,  $k_3' = k' \cos \theta$ ,  $F^2 = a^2 + k'^2 \sin^2 \theta$ ,  $\exp(-2Fs) = \exp(-2as) \exp(-k'^2 s \theta^2 / a)$  の関係を使うと、単位時間あたりの遷移確率は次のようになる。

$$\begin{aligned}
w &= \frac{L^3 m k'^3}{2\pi^2 \hbar} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi/2} \sin \theta |T_{i,f}|^2 d\theta \\
&= \frac{m k'^3 a q^4 s^2}{\epsilon_0^2 \pi^2 \hbar^3 k_v^2} \int_0^{\pi/2} \sin \theta \exp(-2as) \exp\left(-\frac{k'^2 s \theta^2}{a}\right) d\theta \quad (C.4)
\end{aligned}$$

(C.4) 式は、指数項の計算から、 $\theta$  が小さい範囲のみ計算に有効であることがわかるから、次のように書くことができる。

$$w = \frac{8 m k a^2 q^2 s}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^3 k_v^2} \exp(-2as) \quad (4.17)$$

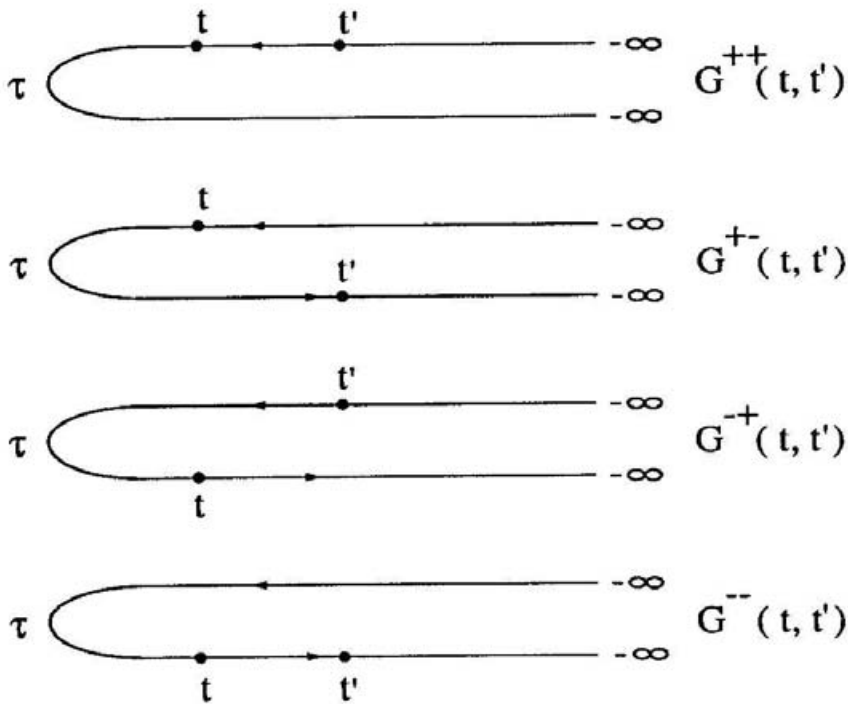
## Appendix D

### Keldysh法によるイオン化確率計算式の導出

ここでは、(4.24)式で与えられるグリーン関数をKeldysh法<sup>[37]</sup>によって計算する手順を示す。そして、その結果をもとに金属表面におけるイオン化の確率を与える一般式を誘導する。

まず、図D-1に示すような時間経路を導入する。この経路は、 $-\infty$ からある時間  $\tau$  へ行き、さらに $-\infty$ へ戻るようにとる。ここで、 $\tau > t, t'$ である。 $\tau \rightarrow +\infty$ とすることによって、この経路は時間に対して順方向 ( $-\infty \rightarrow +\infty$ ) と逆方向 ( $+\infty \rightarrow -\infty$ ) の2つの経路になる。この経路によって、(4.24)式のT積の平均値はファイマンダイアグラムの合成として求められる。ダイアグラムは以下の規則に沿って求められるものとする。

1. 時間の実軸上に沿ってダイアグラムの点 (vertex) が存在する。順方向経路上の点に対しては+、逆方向経路上の点に対しては-の符号を付ける。
2. 各点からは1つのフォノンと2つの電子の線が出入りする。この線の出入りは点の符号に対応して決まる。



図D-1 Keldysh法によるグリーン関数の計算の経路

このような経路と点の設定に対して、図D-1に示すような4つの組合せがある。したがって、(4.24)式のグリーン関数 $G(t, t')$ は、これに対応して次の4つの規格化した関数を考えることができる。

$$\begin{aligned}
 G^{++}(t, t') &= -i \langle 0 | U(-\infty, t) \tilde{A}(t) U(t, t') \tilde{B}^+(t') U(t', -\infty) | 0 \rangle \\
 G^{+-}(t, t') &= i \langle 0 | U(-\infty, t) \tilde{B}^+(t') U(t, t') \tilde{A}(t) U(t', -\infty) | 0 \rangle \\
 G^{-+}(t, t') &= -i \langle 0 | U(-\infty, t) \tilde{A}(t) U(t, t') \tilde{B}^+(t') U(t', -\infty) | 0 \rangle \\
 G^{--}(t, t') &= i \langle 0 | U(-\infty, t) \tilde{B}^+(t') U(t, t') \tilde{A}(t) U(t', -\infty) | 0 \rangle \quad (D.1)
 \end{aligned}$$

ここで、 $G(t, t')$ の添字の符号 $+$ 、 $-$ は $t, t'$ の点が存在する経路の符号を示す。上式では、 $S$ -行列が

$$S = U(-\infty, \tau) U(\tau, +\infty) \quad (D.2)$$

で表わされることを利用した。また、 $\psi(0)$ を0と定義し直した。

$G^{++}(t, t')$ 、 $G^{--}(t, t')$ は次式の関係で表わされる。

$$\begin{aligned}
 G^{++}(t, t') &= \theta(t-t') G^{-+}(t, t') + \theta(t'-t) G^{+-}(t, t') \\
 G^{--}(t, t') &= \theta(t-t') G^{+-}(t, t') + \theta(t'-t) G^{-+}(t, t') \quad (D.3)
 \end{aligned}$$

したがって、2つの独立なグリーン関数で系の全グリーン関数を表わすことができる。

このグリーン関数の計算にはDyson方程式を利用する。Dyson方程式は、グリーン関数を $G$ と略記すると次式で表わされる。

$$G = G_0 + G_0 \Sigma G \quad (D.4)$$

$G_0$ は無摂動状態でのグリーン関数であり、 $\Sigma$ は自己エネルギー部分である。相互作用している場についてグリーン関数を求めるには、自己エネルギー部分が計算できればよい。 $G$ は4つの関数を持つことから次式の $2 \times 2$ の行列で記述できる。

$$G = \begin{pmatrix} G^{++} & G^{+-} \\ G^{-+} & G^{--} \end{pmatrix} \quad (D.5)$$

(D.5) 式で与えられるDyson方程式は4つの方程式となる。しかしながら、(D.3) 式で示したように、 $G$ は2つの独立関数のみで与えることができる。したがって、 $G$ に関する方程式は正準変換によって2つの方程式にすることができる。正準変換として次式の変換を行う。

$$\bar{G} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix} G \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{D.6})$$

これによって、グリーン関数は次のようになる。

$$\bar{G} = \begin{pmatrix} 0 & G^r \\ G^a & F \end{pmatrix} \quad (\text{D.7})$$

ただし、

$$\begin{aligned} G^r &= G^{++} - G^{+-} \\ G^a &= G^{--} - G^{-+} \\ F &= G^{++} + G^{--} \end{aligned}$$

であり、 $G^r$ は遅延グリーン関数、 $G^a$ は先進グリーン関数として定義される。

金属表面に近づく原子に対して、一体型のポテンシャル $V(t)$ によって時間に依存する摂動が生じるとする。また、摂動は瞬時に起こるものとする。この場合、Dyson方程式中の自己エネルギー部分は次式で与えることができる。

$$\Sigma(t, t') = \delta(t - t') \begin{pmatrix} V(t) & 0 \\ 0 & -V(t) \end{pmatrix} \quad (\text{D.8})$$

Dyson方程式(D.4)は正準変換したグリーン関数に対しても同様の式の形である。したがって、(D.7)と正準変換した自己エネルギー部分をDyson方程式に代入することによって次式の関係が導かれる。

$$\begin{aligned} G^r &= G_0^r + G_0^r V G^r \\ G^a &= G_0^a + G_0^a V G^a \\ F &= F_0 + F_0 V G^r + G_0^a V F \end{aligned} \quad (\text{D.9})$$

金属表面におけるイオン化過程に対して、(D.9)からグリーン関数を計算する。まず、系のハミルトニアンとしてAndersonハミルトニアン型のものが適用できると仮定

する。金属表面と原子との間に相互作用が生じている系では、ハミルトニアンは次式のようなになる。

$$H = H_k + H_d + H_{kd} \quad (D.10)$$

$H_k$  : 金属中の電子 ( $k$  状態と定義する) のハミルトニアン

$H_d$  : 原子の価電子 ( $d$  状態と定義する) のハミルトニアン

$H_{kd}$  :  $k-d$  電子の相互作用によるハミルトニアン

電子のスピンを無視し、状態  $d$  の電子軌道を 1 通りと仮定すると、 $H_k$ 、 $H_d$  および  $H_{kd}$  は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} H_k &= \sum_k \epsilon_k C_k^\dagger C_k \\ H_d &= \epsilon_d C_d^\dagger C_d \\ H_{kd} &= \sum_k (V_{dk} C_d^\dagger C_k + V_{kd} C_k^\dagger C_d + \dots) \end{aligned} \quad (D.11)$$

$k$  : 金属電子の波数ベクトル

$\epsilon_k$  : 金属電子のエネルギー

$\epsilon_d$  : 価電子のエネルギー

$V$  : 相互作用による行列要素

次に、式の展開を簡単にするために、次式で定義される換算グリーン関数を導入する。

$$G_{dk}(t, t') = \exp \left[ i \int_0^t \epsilon_d d\tau - i \int_0^{t'} \epsilon_k d\tau \right] g_{dk}(t, t') \quad (D.12)$$

換算グリーン関数は  $G^*$ 、 $G^r$  および  $F$  に対しても同様に定義することができる。また、無摂動のグリーン関数に対しても同様に定義することができる。 $V$  に対しては、次のように定義する。

$$V_{dk}(t) = V_{dk}(t) \exp \left[ i \int_0^t (\epsilon_d - \epsilon_k) d\tau \right] \quad (D.13)$$

$d$ -電子の無摂動の換算グリーン関数は次式のように与えることができる。



$$g_0 = \begin{pmatrix} \theta(t-t') - n_d^0 & -n_d^0 \\ 1 - n_d^0 & \theta(t'-t) - n_d^0 \end{pmatrix} \quad (D.14)$$

ここで、 $n_d^0$ は初期状態におけるd-電子の占有数である。この式を正準変換すると次のようになる。

$$\bar{g}_0 = \begin{pmatrix} 0 & g_0^r \\ g_0^a & f_0 \end{pmatrix} = -i \delta_{dk} \begin{pmatrix} 0 & -\theta(t'-t) \\ \theta(t-t') & 1 - 2n_d^0 \end{pmatrix} \quad (D.15)$$

換算グリーン関数に対してもDyson方程式はこれまでと同様に求められる。

$$\begin{aligned} g^r &= g_0^r + g_0^r v g^r \\ g^a &= g_0^a + g_0^a v g^a \\ f &= (1 + g^a v) f_0 (1 + v g^r) \end{aligned} \quad (D.16)$$

上式の第3番目の式は、詳細に記述すると次式のようになる。

$$f_{dk}(t, t') = [1 + g^a v]_{dq} f_{0q} (t') [1 + v g^r]_{qk} (t', t') \quad (D.17)$$

この式に、 $f_0 = 1 - 2n_q^0$ を代入し、さらに $g_0^a(t'', -\infty) g_0^r(-\infty, t'') = 1$ の関係を使って、時間を $-\infty$ に拡張すると次式が得られる。

$$f_{dk}(t, t') = -i \sum_q (1 - 2n_q^0) [(1 + g^a v) g_0^a]_{dq} (t, -\infty) [g_0^b (1 + v g^r)]_{qk} (-\infty, t') \quad (D.18)$$

この式は、(D.16)式から、

$$f_{dk}(t, t') = i \sum_q (2n_q^0 - 1) g_{dq}^a (t, -\infty) g_{qk}^r (-\infty, t') \quad (D.19)$$

とまとめられる。したがって、 $f_{dk}$ は先進グリーン関数 $g^a$ と遅延グリーン関数 $g^r$ によって表わすことができる。

$g^a$ 、 $g^r$ および $f$ はその定義から次のような関係にある。

$$g_{dk}^{\pm}(t, t') = \frac{1}{2}(g^a + g^r + f) \quad (\text{D.20})$$

$t' > t$  においては  $g_{dk}(t, t') = 0$  である。したがって、 $f$  において初期状態として  $n_q^0$  を 0、または 1 とすることによって、 $g^a$ 、 $g^r$  は次式に示すような関係で表わすことができる。

$$\begin{aligned} g_{dk}^r(t, t') &= i\theta(t' - t) \sum_q g_{dq}^a(t, -\infty) g_{qk}^r(-\infty, t') \quad (n_q^0 = 0) \\ g_{dk}^a(t, t') &= -i\theta(t - t') \sum_q g_{dq}^a(t, -\infty) g_{qk}^r(-\infty, t') \quad (n_q^0 = 1) \end{aligned} \quad (\text{D.21})$$

上式は階段関数に対して次式のようにまとめることができる。

$$g_{dk}(t, t') = \begin{cases} -i \sum_{\epsilon_q > \epsilon_f} g_{dq}^a(t, -\infty) g_{qk}^r(-\infty, t') & (t > t') \\ i \sum_{\epsilon_q < \epsilon_f} g_{dq}^a(t, -\infty) g_{qk}^r(-\infty, t') & (t < t') \end{cases} \quad (\text{D.22})$$

ここで、 $\epsilon_f$  はフェルミエネルギーである。(D.22) 式が Blandin らによって導かれたグリーン関数の計算式である。

(D.22) 式を負イオンの生成過程に適用させる。負イオンの生成確率は、 $d$ -電子の占有確率を計算することによって求められる。 $d$ -電子の占有確率は、グリーン関数によって次式の関係で与えられる<sup>[35][36]</sup>。

$$n_d(t) = \langle C_d^\dagger(t) C_d \rangle = -i g_{dd}(t, t+) \quad (\text{D.23})$$

$t+$  は  $t$  に無限小に近い時間である。ここでは、 $g_{dd}$  として先進グリーン関数を使用して解析を進める。 $g_{dd}^a$  に対して Dyson 方程式は次式のようになる。

$$g_{dd}^a = g_0^a + g_0^a \sigma g_{dd}^a \quad (\text{D.24})$$

ここで、

$$\sigma = \sum_k v_k q_0^a v_k^* \quad (\text{D.25})$$

一方、(D.22) 式の関係から  $n_d(t)$  は次のようになる。

$$\begin{aligned}
n_d(t) &= \sum_{\epsilon_k < \epsilon_f} |g_{dk}^a(t, -\infty)| \\
&= \sum_{\epsilon_k < \epsilon_f} \left| \sum_{\tau} g_{dd}^a(t, \tau) v_k(\tau) g_0^a(\tau, -\infty) \right|^2 \\
&= \sum_{\epsilon_k < \epsilon_f} \left| \int g_{dd}^a(t, \tau) v_k(\tau) d\tau \right|^2
\end{aligned} \tag{D.26}$$

したがって、(D.24)の積分方程式を解いて  $g_{dd}^a(t, \tau)$  を求め、さらに (D.26) 式を計算することにより、イオン化確率が求められる。

まず、 $\sigma$  の計算を行う。

$$\sigma(t, t') = \sum_k v_k(t) g_0^a(t, t') v_k^*(t') \tag{D.27}$$

$v_k(t)$  はこれまでと同じように次式で定義する。

$$v_k(t) = v_{dk}(t) \exp \left[ i \int_0^t \epsilon_d(\tau) d\tau - i \epsilon_k t \right] \tag{D.28}$$

摂動を与えるポテンシャル  $V_{dk}(t)$  は、その時間依存性を分離して次式で表わすことができるかと仮定する。

$$V_{dk}(t) = V_k u(t) \tag{D.29}$$

この仮定により、(D.28)式は次のようになる。

$$\sigma(t, t') = \sum |v_k|^2 u(t) u^*(t') \exp \left[ i \int_{t'}^t \epsilon_d(\tau) d\tau - i \epsilon_k \tau \right] g_0^a(t, t') \tag{D.30}$$

ただし、 $\tau = t - t'$  とおいた。また、上式において  $|V_k|^2$  は金属内における摂動を受けた状態の電子のエネルギー分布を示すものである。これは、 $k$  状態でエネルギー分布の平均値と電子ガスの状態密度  $\rho(\epsilon_k)$  の積に等しい。したがって、

$$\sum |v_k|^2 \exp(-i \epsilon_k t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \langle |v_k|^2 \rangle \delta(\epsilon - \epsilon_k) \rho(\epsilon) \exp(-i \epsilon \tau) d\epsilon \tag{D.31}$$

と表わすことができる。さらに、上式において、

$$\Delta(\epsilon) = \pi \rho(\epsilon) \langle |V_k|^2 \rangle \delta(\epsilon - \epsilon_k) \quad (\text{D.32})$$

として、これがk状態に依存せず一定であると仮定する。これによって、

$$\sum |v_k|^2 \exp(-i\epsilon_k t) = \frac{\Delta_0}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-i\epsilon \tau) d\epsilon \quad (\text{D.33})$$

と整理される。この式を(D.30)式に代入することによって次式が得られる。

$$\sigma(t, t') = u(t) u^*(t) \exp \left[ i \int_0^t \epsilon_d(\tau') d\tau' \right] \times (-i\delta(t)) \quad (\text{D.34})$$

$t' \rightarrow t^+ \approx t$ では、

$$\exp \left[ i \int_0^t \epsilon_d(\tau) d\tau \right] \rightarrow 1$$

であるから、結局 $\sigma(t, t')$ は次式のようになる。

$$\sigma(t, t') = -i\Delta_0 |u(t)|^2 \delta(\tau) \quad (\text{D.35})$$

以上の結果を使用して(D.24)を解くと次式が得られる。

$$g_{dd}^a(t, t') = -i\theta(t-t') \exp \left( - \int_{t'}^t \Delta(\tau) d\tau \right) \quad (\text{D.36})$$

この結果、(D.26)式を計算することができる。(D.26)式に(D.28)式と(D.36)式を代入する。

$$n_d(t) = \sum_{\epsilon_k < \epsilon_t} \left| \int_{-\infty}^t -i\theta(t-\tau) \exp \left( - \int_{\tau}^t \Delta(\tau') d\tau' \right) v_k u(\tau) \exp \left[ i \int_0^{\tau} \epsilon_a(\tau') d\tau' - i\epsilon_k \tau \right] d\tau \right|^2 \quad (\text{D.37})$$

$t > \tau$  では、 $u(\tau) = 0$  であることを考慮すると、

$$n_d(t) = \sum_{\epsilon_k < \epsilon_t} \rho(\epsilon_k) \langle |v_k|^2 \rangle$$

$$\times \left| -i \int_{-\infty}^t u(\tau) \exp\left(-\int_{\tau}^t \Delta(\tau') d\tau'\right) \exp\left[-i \int_{\tau}^t [\epsilon_a(\tau') - \epsilon_k] d\tau'\right] d\tau \right|^2$$

(D.38)

である。さらに、(D.31)、(D.33) の関係を利用して  $\epsilon$  に関する積分表示にすると、 $n_d(t)$  は次式のようにまとめることができる。

$$n_d(t) = \frac{\Delta_0}{\pi} \int \left| \int_{-\infty}^t u(\tau) \exp\left(i \int_{\tau}^t [\epsilon - \epsilon_d(\tau') + i\Delta(\tau')] d\tau'\right) d\tau \right|^2 d\epsilon \quad (4.27)$$

## Appendix E

### 低エネルギーの水素原子からの負水素イオン生成効率式の導出

Appendix Dで示したように、金属表面におけるイオン化効率 (4.27) 式で与えられる。

$$n_d(t) = \frac{\Delta_0}{\pi} \int \left| \int_{-\infty}^t u(\tau) \exp\left(i \int_{\tau}^t [\epsilon - \epsilon_d(\tau') + i\Delta(\tau')] d\tau'\right) d\tau \right|^2 d\epsilon$$

- $\epsilon$  : 金属電子のエネルギー
- $\epsilon_d$  : 価電子のエネルギー
- $\Delta(\tau)$  : 時間  $\tau$  におけるエネルギー準位の拡大幅
- $\Delta_0$  : 準位幅の拡大の振幅
- $u(\tau) = \Delta(\tau) / \Delta_0$

エネルギー準位の拡大幅  $\Delta(\tau)$  は図4-4に示したように、水素原子が表面から離脱していくと距離とともに指数的に減少する。したがって、 $\Delta(\tau) \propto \exp(-\alpha z)$  である。  $z = v\tau$  であるから、

$$\Delta(\tau) = \exp(-\alpha v \tau) \quad (\text{E.1})$$

を (4.27) 式に代入して  $n_d(t)$  を求めると次式のようにになる。

$$n_d(t) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\epsilon_t} \left| \int_0^t \exp\left[i(\epsilon - \epsilon_d)\tau - \frac{1}{2}\alpha v \tau - \frac{1}{\alpha v} \exp(-\alpha v)\right] d\tau \right|^2 d\epsilon \quad (\text{E.2})$$

ただし、 $\epsilon_d(\tau) = \text{constant}$  とした。(4.27) 式において、

$$u(\tau) w = u(\tau) \exp\left(-\int_{\tau}^t \Delta(\tau') d\tau'\right)$$

の項が重み関数のような形で  $\epsilon - \epsilon_d(\tau)$  の項にかかる。 $u(\tau) W$  の項は、表面からの距離  $z$  に換算して数Åの範囲でのみ、 $u(\tau) W \gg 0$  であるので、 $\epsilon_d(\tau)$  も  $z$  の狭い範囲でのみ計算に影響を与える。この範囲では  $\epsilon_d(\tau)$  の変化も小さいので、 $\epsilon_d(\tau) =$

constantとすることができる。

(E.2) 式は  $\exp(-\alpha v \tau) = x$  とおいて、ガンマ関数、

$$\Gamma(x) = k^x \int_0^\infty x^{x-1} \exp(-kx) dx$$

を利用すると次式のようになる。

$$n_d(t) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\epsilon_f} \frac{1}{\alpha v} \left| \Gamma\left(\frac{1}{2} + \frac{i}{\alpha v} (\epsilon - \epsilon_d)\right) \right|^2 d\epsilon \quad (\text{E.3})$$

ここで、

$$\left| \Gamma\left(\frac{1}{2} + iy\right) \right|^2 = \frac{\pi}{\cosh \pi y}$$

となる<sup>[46]</sup>ことを利用すると、

$$n_d(t) = \frac{1}{\alpha v} \int_{-\infty}^{\epsilon_f} \frac{1}{\cosh \pi \left(\frac{\epsilon - \epsilon_d}{\alpha v}\right)} d\epsilon \quad (\text{E.4})$$

である。負イオン生成過程においては、 $\epsilon_f < \epsilon_d$ である。また、表面から離脱する原子のエネルギーが小さい場合は、 $\alpha v \ll \epsilon - \epsilon_d$ と考えてよい。したがって、(E.4) 式は、次式のように近似できる。

$$n_d(t) = \frac{2}{\alpha v} \int_{-\infty}^{\epsilon_f} \exp\left(\frac{\pi(\epsilon - \epsilon_d)}{\alpha v}\right) d\epsilon \quad (\text{E.5})$$

さらに、仕事関数を  $\phi$ 、原子の電子親和力を  $\epsilon_a$  とすると、 $\epsilon_d - \epsilon_f \sim \phi - \epsilon_a$  であるから、(E.5) 式を積分することによって、負水素イオン生成効率は次のようになる。

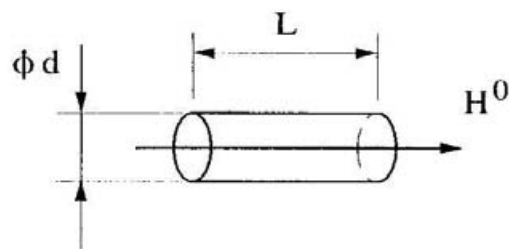
$$\beta^- = \frac{2}{\pi} \exp\left(\frac{-\pi(\phi - \epsilon_a)}{\alpha v}\right) \quad (4.28)$$

## Appendix F

### 水素原子線の加熱について

フィラメント管を通過する水素原子線がフィラメント温度まで加熱されることを計算によって示す。

右図に示すようなフィラメントで考える。フィラメント寸法は、 $d$ が0.9 cm、 $L$ が3.9 cmである。水素解離器の出口では0.1 Torr以上の真空度であり、水素原子の平均自由行程 $\lambda$ は0.1 cm以下である。したがって、 $L, d \gg \lambda$ であり、粘性流に近い。そこで、水素原子線がフィラメントを通過するとき、フィラメントからの熱伝達によって水素原子が加熱されるとして計算を行う。



図F-1 フィラメントの形状

フィラメントからの伝熱量は次式で与えられる。

$$Q = \alpha (T_2 - T_1) \pi d L \quad (\text{F.1})$$

$\alpha$	: 熱伝達率	(J/m <sup>2</sup> s K)
$T_2$	: フィラメント温度	(K)
$T_1$	: 水素原子線入口温度	(K)
$L$	: フィラメント長	(m)

一方、フィラメント内を通過する水素原子線の温度を $\Delta T$ 上昇させるために必要な熱量は次式で与えられる。

$$Q' = \frac{\pi}{4} d^2 v_m \rho g C_p \Delta T \quad (\text{F.2})$$

ただし、	$d$	: フィラメント直径	(m)
	$v_m$	: 水素原子速度	(m/s)
	$\rho g$	: 比重量	(kg/m <sup>3</sup> )
	$C_p$	: 比熱	(J/s)
	$\Delta T$	: 温度上昇値	(K)

$Q > Q'$  であれば、水素原子線はフィラメント温度まで加熱される。



表F-1 1500 Kの水素原子の物性値

比重	$1.2 \times 10^{-6}$	$\text{kg/m}^3$
比熱	15	$\text{kJ/kg K}$
粘性係数	$2.5 \times 10^{-6}$	$\text{kg s/m}^2$
温度伝導率	$2.2 \times 10^{-3}$	$\text{m}^2/\text{s}$
熱伝導率	$1.9 \times 10^{-5}$	$\text{kJ/m s K}$

フィラメント入口で1250 Kの水素原子線を、フィラメント出口で1750 Kまで加熱する場合について考える。計算に際して、水素原子の物性値は、水素原子線の温度を入口温度と出口温度の平均値1500 Kとして設定する。計算に用いた物性値は表F-1に示す。

1500 Kの水素原子線のレイノルズ数 $Re$ 、プラントル数 $Pr$ を計算すると、 $Re = 2.14$ 、 $Pr = 9700$ となる。熱伝達率は、ヌセルト数の層流に対するGraetzの実験式<sup>[47]</sup>が適用できると仮定すると、次式の関係から求めることができる。

$$Nu = \frac{\alpha d}{\kappa} = 3.65 + \frac{0.0668 (d/L) Pr Re}{1 + 0.04 [(d/L) Pr Re]^{2/3}} \quad (\text{F.3})$$

ここで、 $\kappa$ は熱伝導率である。

上式から、熱伝達率 $\alpha$ は、 $0.08 \text{ kJ/m}^2 \text{ s K}$ となる。したがって、1750 Kのフィラメントから水素原子線に伝達できる熱量 $Q$ は、約 $43 \text{ J/s}$ と計算される。一方、水素原子線を1750 Kまで加熱するために必要な熱量 $Q'$ は、(F.1)式より、 $2.7 \text{ J/s}$ である。この結果から、フィラメントから水素原子線に伝達することができる熱量の方が、水素原子線を1750 Kに加熱するために必要な熱量よりも十分に大きいことがわかる。したがって、水素原子線のフィラメント出口における温度は、ほとんどフィラメントと同じ温度になると考えてよい。

## 参考文献

- [1] C.D.Moak, H.E.Banta, J.N.Thurston, J.W.Johnson and R.F.King, *Rev.Sci.Instrum.* **30**, 694(1959)
- [2] L.E.Collins and R.H.Gobbett, *Nucl.Instrum. and Meth.* **35**, 277(1965)
- [3] G.P.Lawrence, R.K.Beauchamp and J.L.Mckibben, *Nucl.Instrum. and Meth.* **32**, 357(1965)
- [4] K.W.Ehlers, *Nucl.Instrum. and Meth.* **32**, 309(1965)
- [5] K.Prelec and Th.Sluyters, *Rev.Sci.Instrum.* **44**, 1451(1973)
- [6] E.Nicolopoulou, M.Bacal and H.J.Doucet, *J.Physique* **38**, 1399(1977)
- [7] M.Allan and S.F.Wong, *Phys.Rev.Lett.* **41**, 1791(1978)
- [8] B.Peart, R.A.Forrest and K.Dolder, *J.Phys.* **B12**, 3441(1979)
- [9] C.Bottcher and B.D.Buckley, *J.Phys.* **B12**, L497(1979)
- [10] J.M.Wadehra and J.N.Bardsley, *Phys.Rev.Lett.* **41**, 1795(1978)
- [11] K.N.Leung, K.W.Ehlers and M.Bacal, *Rev.Sci.Instrum.* **54**, 56(1983)
- [12] A.J.T.Holmes, G.Dammertz and T.S.Green, *Rev.Sci.Instrum.* **56**, 1697(1985)
- [13] S.R.Walther, K.N.Leung and W.B.Kunkel, *J.Appl.Phys.* **64**, 3424(1988)
- [14] M.Bacal, E.Nicolopoulou and H.Doucet, *Proc. Int. Symp. on Production and Neutralization of Negative Ions and Beams, Brookhaven, (1977), BNL-Report BNL-50727(1977), p.26*
- [15] J.R.Hiskes, *Production and Neutralization of Negative Ions and Beams, AIP Conf. Proc. No.158, 2(1987)*
- [16] J.R.Hiskes, A.M.Karo and P.A.Willmann, *J.Vac.Sci.Technol. A* **3**, 1229 (1985)
- [17] J.R.Hiskes, *J.Appl.Phys.* **51**, 4592(1980)
- [18] J.R.Hiskes, A.M.Karo, *Production and Neutralization of Negative Ions and Beams, AIP Conf. Proc. No.111, 3(1987)*
- [19] K.N.Leung, K.W.Ehlers and R.V.Pyle, *Rev.Sci.Instrum.* **57**, 321(1986)
- [20] P.W.Allison, J.D.Sherman and D.B.Holtkamp, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **NS-30**, 2204(1983)
- [21] J.B.Taylor and I.Langmuir, *Phys.Rev.* **51**, 753(1937)
- [22] H.Yamaoka, M.Sasao, M.Wada and H.J.Ramos, *Nucl.Instrum. and Meth.* **B36**, 227(1989)

- [23] M.Wada, Ph.D.Thesis, LBL-Report, 15800(1983)
- [24] W.G.Graham, Proc. Int. Symp. on Production and Neutralization of Negative Ions and Beams, Brookhaven, (1980), BNL-Report BNL-51304(1980), p.126
- [25] B.Rasser, J.N.M.Van Wunnik and J.Los, Surface Science **118**, 697(1982)
- [26] A.Blandin, A.Nourtier and D.W.Hone, J.Physique **37**, 369(1976)
- [27] R.Brako and D.M.Newns, Surface Science **108**, 253(1981)
- [28] J.K.Nørskov and B.I.Lundqvist, Phys.Rev. **B19**, 5661(1979)
- [29] Ming L.Yu, Phys.Rev.Lett. **47**, 1325(1981)
- [30] J.W.Gadzuk, Surface Science **6**, 133(1967)
- [31] J.W.Gadzuk, Surface Science **6**, 159(1967)
- [32] M.Remy, J.Chem.Phys. **53**, 2487(1970)
- [33] 例えば、L.I.Schiff, Quantum Mechanics, p.246, McGRAW-HILL(1968)
- [34] 例えば、L.I.Schiff, Quantum Mechanics, p.285, McGRAW-HILL(1968)
- [35] A.L.Fetter and J.D.Walecka, 松原武生、藤井勝彦 訳、多粒子系の量子論、McGRAW-HILL(1987)
- [36] 高橋 康 著、物性研究者のための場の量子論 I, II, 培風館 (1976)
- [37] L.V.Keldysh, Sov. Phys. JETP, **20**, 1018(1965)
- [38] H.V.Smith,Jr., P.Allison, E.J.Pitcher, R.R.Stevens,Jr., G.T.Worth, G.C.Stutzin,A.T.Young, A.S.Schlachter, K.N.Leung and W.B.Kunkel, Rev.Sci.Instrum. **61**, 424(1990)
- [39] M.Pealat, J-P.E.Taran, M.Bacal and F.Hillion, J.Chem.Phys. **82**, 494(1985)
- [40] W.G.Graham, Phys.Lett. **73**, 186(1979)
- [41] A.Pargellis and M.Seidl, Phys.Rev. **B25**, 4356(1982)
- [42] S.T.Melnichuk, M.Seidl, W.Carr, J.Isenberg and J.Lopes, J.Vac.Sci. Technol. **A 7**,2127(1989)
- [43] 熊谷 寛夫、富永 五郎 編著、真空の物理と応用、裳華房(1970), p.378
- [44] K.J.Snowdon, Nucl.Instrum. and Meth. **B 2**, 540(1984)
- [45] R.H.Fowler, Phys.Rev. **38**, 45(1931)
- [46] 例えば、M.Abramowitz and I.A.Stegun, Handbook of Mathematical Functions US Government Printing Office,Washington,DC, (1964), p.256
- [47] 日本機械学会編、伝熱工学資料、日本機械学会(1966), p.24