

# 電子エネルギー損失分光法を用いた

## Krクラスタの電子励起状態の研究

自然科学研究科物理学専攻博士前期課程荒川研究室

99-141-004

植原 啓方

### 【はじめに】

孤立した原子や分子の集まりである気体と、無限個の原子・分子の集合体である液体や固体との中間には、数個から数千個の原子・分子が集合してできた「クラスター」と呼ばれるナノ・スケールの粒子群が存在する。クラスターはマクロスケールの物質系に比べて単にサイズが小さいというだけではなく、様々な特異な構造と物性を示すことが分かってきた。

Van der Waalsクラスターの代表として、希ガスクラスタを対象とした実験が行われている。希ガスクラスタの電子的励起過程の研究は、T.M öller[1]を中心とするグループでシンクロトロン放射光を用いた蛍光励起分光法により行われてきたが、電子線を用いた研究報告はほとんど無い。電子衝撃によって標的を励起すれば、光を用いた実験では選択則により禁止されている励起過程についても観測することができる。本研究では超音速ジェット法により生成したKrクラスターを標的とした電子エネルギー損失分光実験を行った。電子衝撃励起実験では入射電子エネルギーを適当に選ぶことにより、サイズの大きな固体様クラスターでも表面での励起過程を効率的に測定できる。この測定により希ガスクラスタの電子励起状態とそのサイズ依存性を明らかにすることを目的とした。また、原子と固体で存在が知られているFeshbach共鳴がクラスターにおいても存在するかどうかの検証実験も行った。

### 【電子エネルギー損失分光実験】

電子を標的に入射したとき、一部の電子は標的内の電子やフォノン等を励起して非弾性散乱される。このような非弾性散乱電子のエネルギー分布を測定する方法が電子エネルギー損失分光法であり、標的の表面およびバルクの電子構造に関する知見が得られる。2台の疑似半球型の静電偏向分析器を用いて、それぞれ入射電子エネルギーの単色化と散乱電子エネルギーの分析を行う。散乱電子は二次電子増倍管でパルス検出する。電子エネルギー損失分光実験系の全体図をFig.1に示す。超音速ジェット法により生成したクラスタービームは紙面垂直方向から入射する。

## 【実験結果】

### 1. Krクラスターを標的とした電子エネルギー損失分光実験

入射電子エネルギー $E_0$ が100eV、散乱角度0度でKr原子を標的とした場合の電子エネルギー損失スペクトルをFig.2に示す。横軸はエネルギー損失で、各ピークの位置はKr原子の励起エネルギーに相当する。縦軸は散乱電子の強度で、各ピークの高さがその散乱角での励起の起こりやすさを相対的に示している。

入射電子エネルギー $E_0$ が50eVと200eVでKrクラスターを標的とした電子エネルギー損失スペクトルをFig.3に示す。平均クラスターサイズは1400である。原子の4p5sピーク(10.031eV)より50meVほど低エネルギー損失側へのシフトが見られた。これはJ.Stapelfeldtら[2]による光励起実験の傾向と一致する。また $E_0=200$ eVの時には低エネルギー損失側へのシフトと共に、エネルギー損失10.18eV付近でピークの肩が出現した。これはバルク励起子に対応するものと思われる。

Kr固体中での電子の平均自由行程は50eVの時0.6nm程度であるが、Krクラスターの結晶構造をfcc構造とすると最隣接原子間距離は0.398nmとなる。従ってクラスター最外殻で生成される表面励起子は観測されているが、第二層目以下で形成されるバルク励起子の生成に参与する電子は観測されていない。 $E_0=200$ eVでの電子の平均自由行程は1.2nm程度になり、クラスター内部での励起が起こる。サイズの大きいクラスターを標的としても、入射電子エネルギーを低くすることにより、表面での励起現象を効率良く測定できたと言える。

### 2. KrクラスターにおけるFeshbach型共鳴状態の観測

Kr原子を標的とした、弾性散乱の入射電子エネルギー依存スペクトルをFig.4に示す。このような測定ではスペクトルは概して滑らかな曲線となるが、Fig.4に示すように散乱断面積にピークが現れることがある。標的を励起するために必要なエネルギーよりもわずかに低いエネルギーで電子が標的に衝突した場合、入射電子のエネルギーが全て標的の励起に使われ、入射電子自身も標的に捕らわれてしまい、準安定な負イオン励起状態をつくることもある。これをFeshbach型共鳴状態と呼ぶ。準安定な束縛状態になった電子と、束縛されなかった電子との波の位相のずれの干渉により散乱断面積に鋭い構造が現れる。Kr原子を標的とした実験を行い、本装置で共鳴状態の観測が可能なことを確認した。標的がクラスターの場合は、共鳴状態でエネルギーの一部が格子振動に使われるため、共鳴散乱電子のエネルギーは入射電子エネルギーより低くなると予想される。このエネルギー損失の大きさはクラスターサイズやクラスターの温度によって変化すると考えられる。

[1] T. Möller, in Progress and Application of Synchrotron Radiation to Molecules and

Clusters, ed. A. Ding, (Cambridge University Press, 1991)

[2] J. Stapelfeldt, J. Wörmer, and T. Möller, Phys. Rev. Lett. 62, 98 (1989).

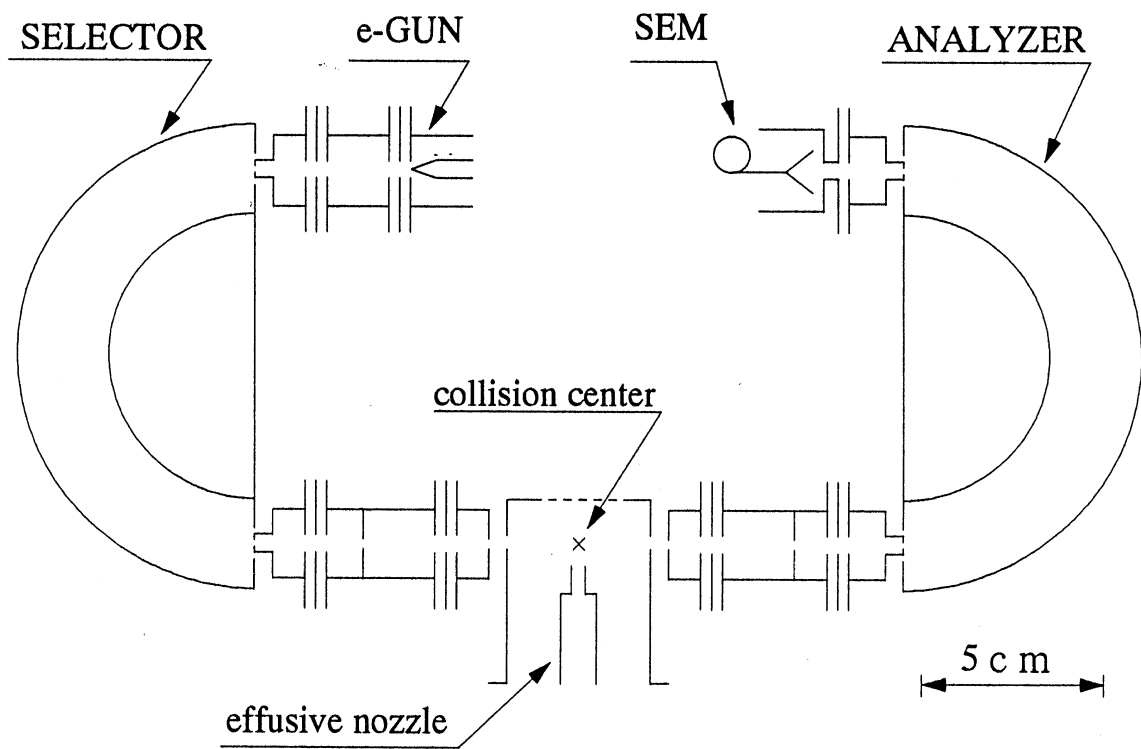


Fig1 電子エネルギー損失分光装置概略図

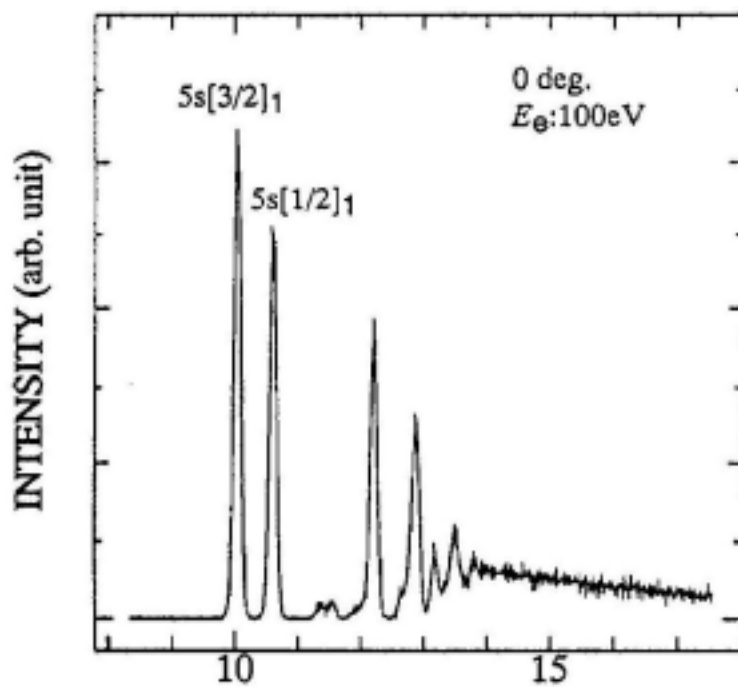


Fig2 Kr原子を標的とした電子エネルギー損失スペクトル

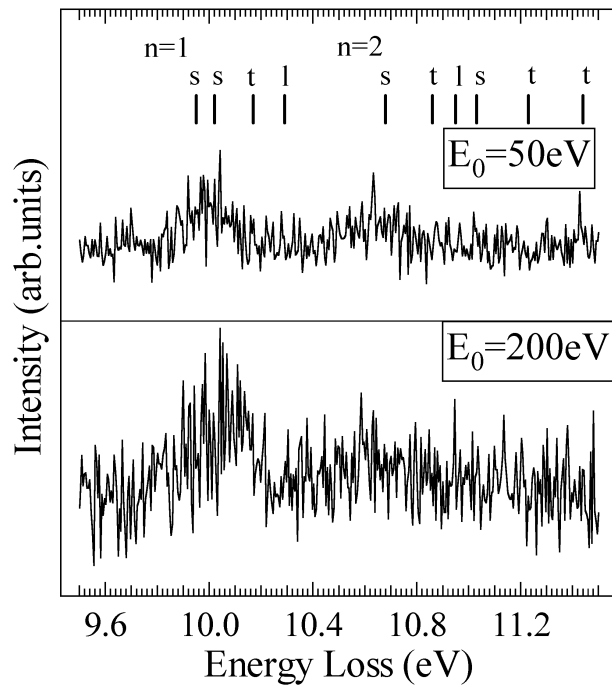


Fig3 Krクラスターを標的とした電子エネルギー損失スペクトル  
 図中の線  $s, t, l$  はそれぞれ Kr 固体の表面励起子、バルク励起子（横  
 型）、バルク励起子（縦型）の生成エネルギーに対応している。

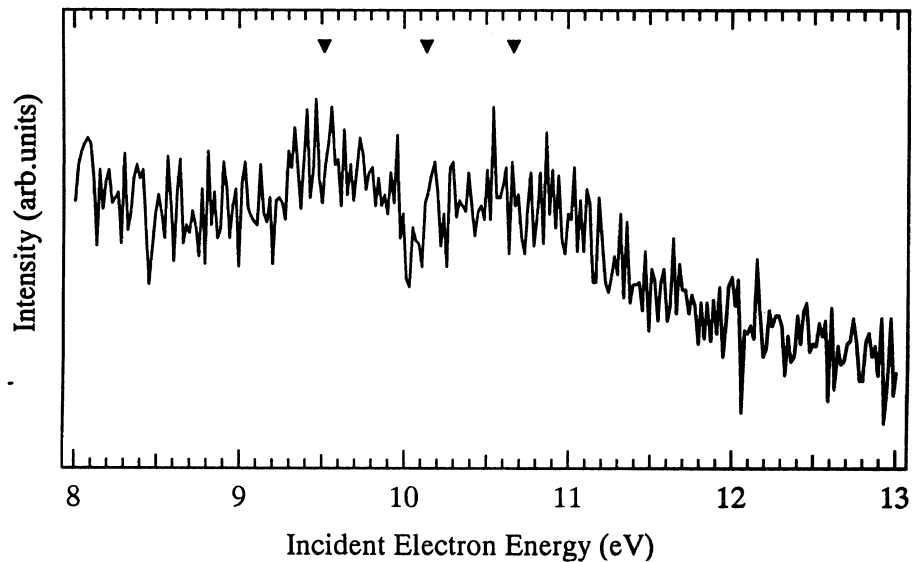


Fig4 Kr原子を標的とした Feshbach 共鳴スペクトル  
 図中の印は Kr 原子の共鳴エネルギーを示している。