

平成 21 年 5 月 29 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19550013

研究課題名 (和文) 多価イオンによる固体表面発光

研究課題名 (英文) Emission of light from solid surfaces induced by highly charged ions

研究代表者

山田 千樫 (YAMADA CHIKASHI)

電気通信大学・電気通信学部・教授

研究者番号：70037266

研究成果の概要：

原子から多数の電子を奪い取った多価イオンはあらゆる粒子の中でも、最も反応性にとんでい  
る。この多価イオンを固体表面に静かに近づけるだけでさまざまな現象が起こり、特に固体表  
面への「ナノ構造物」の生成はナノ加工技術への応用が期待されている。ここではそのメカニ  
ズムを探るため、同時に起こる光 (エックス線も含めて) の発生について調べた。その結果は  
それぞれのターゲットにより様々であるが、固体から多価イオンへの電子の移動、それに続く  
多価イオンからの電子の再放出の 2 つの過程に伴うものであることがはっきりした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合 計
2007年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総 計	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：原子物理学 (多価イオン)、固体表面科学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：多価イオン、オージェ電子、X線発光、固体表面、プラズモン、微粒子

## 1. 研究開始当初の背景

- (1) 多価イオンと固体表面の相互作用において走査型顕微鏡観察および飛行時間型質量分析法などにより、固体表面に多価イオン 1 個当たり 1 個の「ナノ」構造が生成されること、同時に多数の 2 次電子および 2 次イオンが発生することがわかっていった。
- (2) これらの現象はポテンシャルスパッタリングといわれ、多価イオンの内包するポテンシャルエネルギーが各過程に分配されるものとの認識は共有されていた。

## 2. 研究の目的

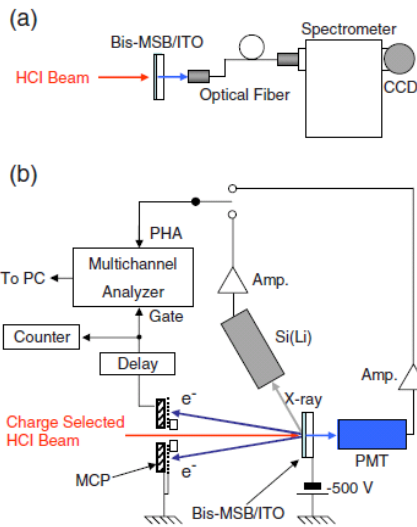
多価イオンと固体表面の相互作用において、発光現象を捉えそのメカニズムをさぐるこ  
と、またそれを定量的に観測し、多価イオン  
のもつポテンシャルエネルギーの諸過程へ  
の配分比を決定する。ターゲットとしては、  
絶縁体、金属、有機蛍光物質、金属微粒子な  
などを想定する。

### 3. 研究の方法

- (1) 発光の分光測定: 有機蛍光物質 (bis-MSB) の発光に関して初期には光電子増倍管による直接測定を行ったが分光測定を計画した。
- (2) 金属, および水素化シリコンとの衝突における X 線発光について, 2 次電子との相関を考慮した。
- (3) ライマン線の発光を観測するためにその波長のみで感度のある光電子増倍管をもちいた。

### 4. 研究成果

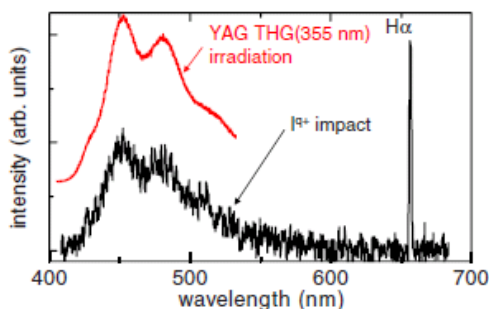
- ① bis-MSB の多価イオン励起発光について. 下図は実験装置である。



図(a)は発光スペクトルの観察, (b)は紫外光と x 線発光の収率を計測するためのものである。

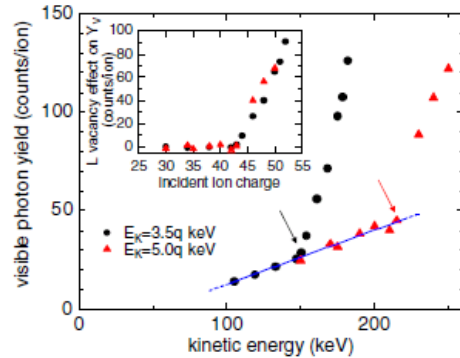
本実験で明らかになったことは, 低速多価イオンではもちろん直接蛍光体の電子的励起を起こすものではないけれど, 多価イオンの脱励起過程で放出される L オージェ電子が, 蛍光体を励起しているものである。

さらにはもうひとつの脱励起過程では, x 線放出が大きな部分を占めることがわかった。図は実際の蛍光スペクトルであり, 光励起スペクトルと全く同じスペクトルをしめし



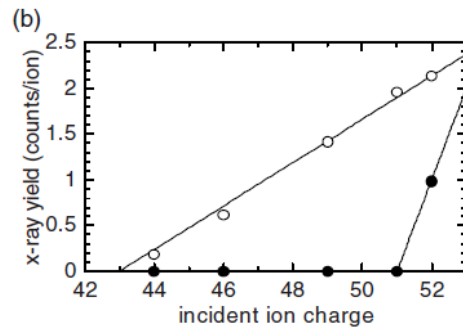
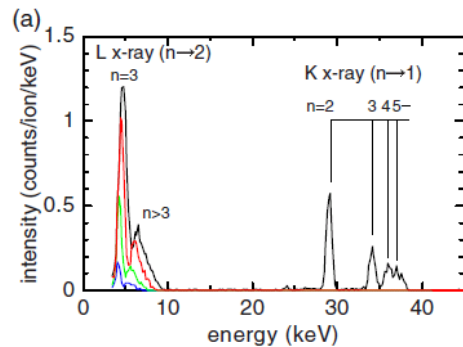
ている。

蛍光収率を多価イオンの運動エネルギーによる寄与を差し引いて多価イオンの価数に対してプロットすると次図 (インセット) のようになる。



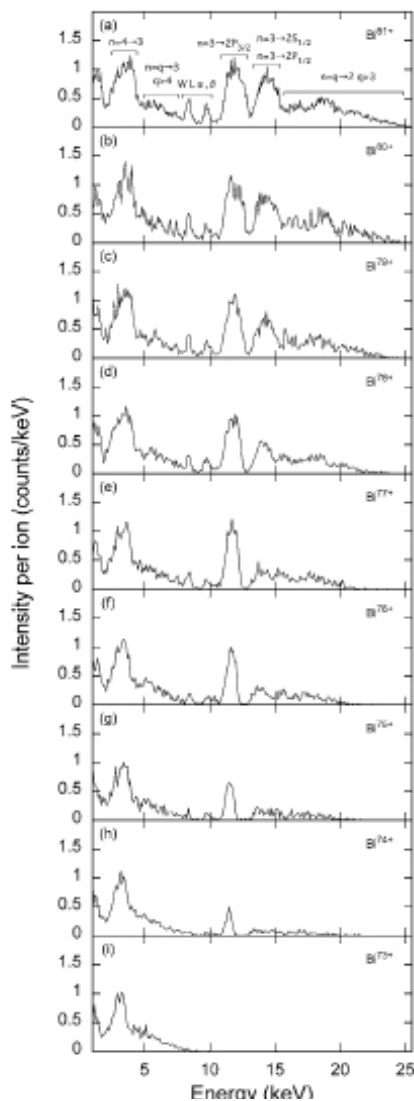
すなわち蛍光収率はネオン様以上で立ち上がっている。つまり L 殻の空席数にほぼ比例して上昇する。

またこれは他の系でも確かめられたことであるが, K エックス線は K 殻に空席があれば必ずそこを埋めるように発光し, したがって多価イオンの内部エネルギーはその分はすべて真空中に放出されてしまう。K エックス線のエネルギーは多価イオンの内部エネルギーの大きな部分となるのでこのチャンネルは重要である。下図は K, L エックス線のスペクトルおよび収率である。L エックス線は 52 価イオンにおいては 10 個の空席があるがエックス線として埋められるのはそのうち約 2 個にすぎない。



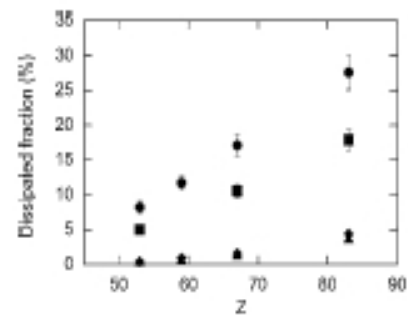
②タングステン表面と各種多価イオンとの衝突における X 線放出について.

X 線放出収率(yield)を I, Pr, Ho, Bi, の多価イオンについて、タングステン表面との衝突時において計測した。その結果、価数および原子番号が大きくなるほど、X 線放出として消費されるポテンシャルエネルギーが大きくなり、固体表面との衝突によって生じた中空原子のエネルギー消費過程として非常に高価数なイオンにおいては、それがほとんどメインのチャンネルとなることが分かった。



上図はビスマスの多価イオンの価数を変化させた時の X 線スペクトルの様子を示し、高価数では高エネルギーの X 線が盛大に放出されていることが分かる。同様のスペクトルを I, Pr, Ho, Bi について測定しポテンシャルエネルギーのうちどれ

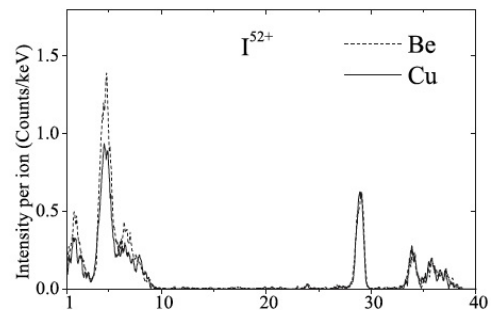
ほどが X 線として放出されるかをプロットしたものが下図である、



●印はヘリウム様イオンであるがビスマス ( $Z = 83$ ) においてはおよそ 30% が X 線として放出されてしまうことが分かった。

③ターゲットの物質を変化させた場合の X 線放出確率の変化。

この実験では多価イオンはヨウ素の裸イオンと水素様イオンに限り、標的物質を変化させた。その結果 K-X 線については標的を変えても変化しなかった(どの物質でも 100%の確率で K-X 線を放出するため)が、L-X 線に対しては標的物質によって X 線放出率に差が見られた。このことは古典的オーバーバリアモデルにおいて、固体のバンド構造を考慮することで定性的には説明することができた。

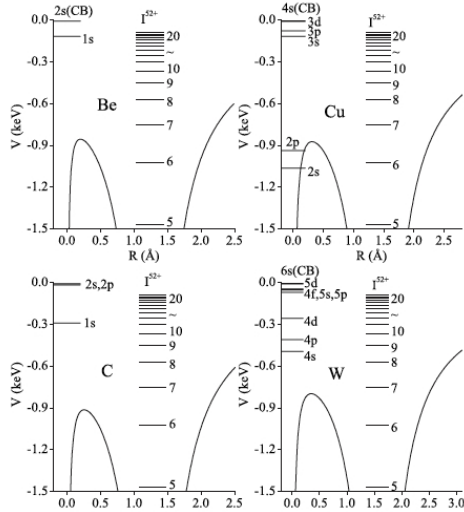


上図はターゲットをベリリウムとした場合と銅とした場合の放出 X 線スペクトル。低エネルギー側の L-X 線で強度が明らかに異なっている。

	$I^{52+}$	$I^{53+}$	
Be	$2.31 \pm 0.14$		This work
C	$2.17 \pm 0.13$	$2.35 \pm 0.14$	This work
Cu	$1.75 \pm 0.11$		This work
W	$1.72 \pm 0.10$	$1.87 \pm 0.11$	This work

この表は L-X 線の放出確率で 1 個の多価イオン当たり何個の X 線光子が放出されるかを示している。多価イオンが固体に近づいた時に多価イオンに流れ込む電子数は標的物質の原子番号が大きいほど多いと考えられる。すると多くのスペクター電子をもらった多価イオ

ンほどオージェ過程による脱励起がすすみ、X線放出に向かう割合が減ってくるためと（おおざっぱには）理解される。下図は多価イオンの空順位とターゲットのバレンスバンドの位置関係を模式的に示したものである。



## 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 8 件）すべて査読あり

- ① R. Nakayama, M. Tona, N. Nakamura, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, C. Yamada, A. Yamazaki, S. Ohtani; Guiding and blocking of highly charged ions through a single glass capillary; Nuc. Inst. Meth. Phys. Res. B (2009), in press.
- ② M. Tona, T. Abe, H. Watanabe, J. Sun, N. Nakamura, C. Yamada, M. Kotani, S. Ohtani; Fluorescence of an organic-dye thin film by interaction with individual slow highly charged ions; Phys. Rev. A 77 (2008) 052902-1-3.
- ③ M. Tona, Y. Fujita, C. Yamada, S. Ohtani; Electronic interaction of individual slow highly charged ions with TiO<sub>2</sub>; Phys. Rev. B 77 (2008) 155427-1-4.
- ④ J. Sun, N. Nakamura, M. Tona, C. Yamada, H. Watanabe, S. Ohtani, Yunqing Fu; Growth of ionization balance from F-like to bare ions of heavy atoms in an electron beam ion trap; Plasma and Fusion Res. 3 (2008) 052-1-5.
- ⑤ M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, T. Terui, S. Mashiko, C. Yamada, S. Ohtani; Nanofabrication on a Si surface by slow highly charged ion impact; Nuc. Inst. Meth. Phys. Res. B 256 (2007) 543-546.
- ⑥ M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, C. Yamada, S. Ohtani; Potential sputtering from Si surface by very highly charged ion impact; Nuc. Inst. Meth. Phys. Res. B 258 (2007) 163-166.
- ⑦ H. Watanabe, J. Sun, M. Tona, N. Nakamura, M. Sakurai, C. Yamada, N. Yoshiyasu, S. Ohtani; X-ray emission in collisions of highly charged I, Pr, Ho, and Bi ions with a W surface; Phys. Rev. A 75 (2007) 062901-1-5.
- ⑧ M. Tona, H. Watanabe, S. Takahashi, N. Nakamura, N. Yoshiyasu, M. Sakurai, T. Terui, S. Mashiko, C. Yamada, S. Ohtani; Nano-crater formation on a Si(111)-(7x7) surface by slow highly charged ion-impact; Surf. Sci. 601 (2007) 723-727.

〔学会発表〕（計 6 件）

- ① 種村徹雄, M. Kundu, 山田千樫, 村田好正; Si(001) 表面に成長した SiO<sub>2</sub> 単結晶クラスター; 日本物理学会第 64 回年次大会(2009) 3.28 立教大学.
- ② J. Sun, H. Watanabe, M. Tona, T. Watanabe, N. Nakamura, C. Yamada, S. Ohtani; X-ray emission in the interaction of slow highly charged ions with a metal surface; 14<sup>th</sup> Int. Conf. Highly Charged Ions (2008) Sept. 4, Tokyo.
- ③ T. Shimazaki, M. Tona, H. Watanabe, N. Nakamura, C. Yamada, S. Ohtani; Diagnostics of the highly charged ion beam extracted from the Tokyo EBIT; 14<sup>th</sup> Int. Conf. Highly Charged Ions, (2008) Sept. 3, Tokyo.
- ④ A. Yamazaki, R. Nawakayama, M. Tona, N. Nakamura, H. Watanabe, N. Yoshiyasu, C. Yamada, S. Ohtani, M. Sakurai; Guiding of very highly charged ions with a glass capillary; 14<sup>th</sup> Int. Conf. Highly Charged Ions, (2008) Sept. 3, Tokyo.
- ⑤ 孫建, 渡辺裕文, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井誠, 山田千樫, 大谷俊介; X-ray emission yields dependent on the target materials (II); 日本物理学会第 63 回年次大会 (2008) 3.23. 近畿大学.
- ⑥ 中山亮, 島崎隆宏, 孫建, 渡辺裕文, 戸名正英, 吉安信雄, 中村信行, 櫻井誠, 山田千樫, 大谷俊介; 高価数多価イオン

ビームのガラスキャピラリー通過実験；  
日本物理学会第62回年次大会(2007)  
9.21. 北海道大学.

[その他]

URL: <http://sapphire.pc.uec.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山田 千樫 (Chikashi Yamada)

電気通信大学・電気通信学部・教授

研究者番号：70037266