

平成22年3月18日現在

研究種目：基盤研究 (C)
 研究期間： 2007 ~ 2009
 課題番号： 19560050
 研究課題名 (和文) 複数原子イオン照射による非線形電子励起効果の研究
 研究課題名 (英文) Non-linear effect of electron excitation induced by polyatomic ions
 研究代表者
 金子 敏明 (KANEKO TOSHIAKI)
 岡山理科大学・理学部・教授
 研究者番号： 40158853

研究成果の概要 (和文)：

加速された複数の炭素原子から成るクラスターイオンを薄膜などの物質に照射した際のエネルギー付与と電荷分布および二次電子の収量が、同速の単一イオン入射でのものと異なる効果(「クラスター効果」)に関する研究を行なった。その結果、比較的小さい速度(ボーア速度程度)のときには、イオン1個に換算したエネルギー付与と二次電子収量が、同速の単一イオン入射に比べて抑制されることを理論的に裏付けることができた。

研究成果の概要 (英文)：

We made a research on the cluster effect in energy deposition, average charge, and secondary electron yield, under irradiation of a material with swift polyatomic ions. At relatively low speed (around the Bohr velocity), the corresponding values per ion induced by a cluster are found to be suppressed compared with the single-ion impact. This result is in good agreement with recent experimental data.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	900,000	270,000	1,170,000
2008年度	400,000	120,000	520,000
2009年度	300,000	90,000	390,000
年度			
年度			
総計	1,600,000	480,000	2,080,000

研究分野：粒子線物理学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用物理学一般

キーワード：(1) クラスターイオン (2) 電子励起 (3) エネルギー損失 (4) 電子分極力
 (5) クーロン爆発 (6) 二次電子 (7) クラスター効果 (8) 平均電荷

1. 研究開始当初の背景

クラスターイオンビームは、同じ電圧で加速された単一イオンに比べて、(1)ビーム照射による標的のチャージアップを抑制できる、

(2)一粒子あたりのエネルギーを1/(粒子数)に下げることができる、(3)狭い領域に高密度のエネルギーを付与することができる、などの利点を持つ。近年、keV以下の領域での

イオン化クラスタービーム蒸着による薄膜形成や表面加工、クラスターイオン注入、MeV領域での複数原子イオン照射による二次電子放出や二次粒子放出、DNAなどの生体高分子イオンの照射効果など、複数原子イオンを入射粒子とする研究が熱心に行なわれている。これは、イオンビームを用いた研究が、単一イオン加速から複合イオン加速へと新たな発展段階を迎えるとともに、従来の固体物質のみならず生体物質や液体物質など、医療・生体を鑑みたより広範な応用が可能になってきたからである。このようなイオンビームの高度化の趨勢にあって、複数原子を入射粒子や標的とした研究には、複数原子系の空間的構造が関係し、媒質中でのクーロン爆発などによる形状変化が起こるため、単一イオン入射では得られない新しい知見が得られる。これらの知見は、イオンビームを用いたナノテクノロジー技術や新医療技術、イオンビームによる加工などへの基礎的知見を与えるという観点から注目されている。

2. 研究の目的

この研究は、電子励起過程における「クラスター粒子数に関する非線形効果」を理論的に調べることにある。従来の線形効果の立場では、「N個の同種原子からなるクラスターが物質に入射したときの電子励起の効果は、同じ速さの原子1個が入射したときの効果のN倍になる」というものである。クラスター入射では、近接した空間領域に複数の粒子が密集するために、各粒子が標的電子を励起する確率振幅に干渉が生じる。このため、極端な場合にはNの2乗倍もの大きな効果が期待される一方、干渉の仕方によってはN倍よりも小さな効果しか与えない。このような非線形効果は、複数原子入射での特徴的な効果であり、単一イオン入射では決して現れない。その理由は、単一イオン入射での特徴量（原子の種類、速さ、電荷数）に加えて、入射クラスターの構成原子数と空間構造が大きく影響するからである。この研究では、(1)標的物質へのエネルギー付与（エネルギー損失）におけるクラスター効果、(2)標的薄膜から放出される電子収率に関するクラスター効果、の2点に焦点を絞って、MeV領域での「複数原子イオン照射による非線形電子励起効果」を3年間で研究することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は、研究代表者1名によって3年間で行われるシミュレーションを含めた理論的研究である。この研究に関連するクラスター実験は、日本では、原子力機構高崎量子応用研究所の斉藤勇一氏のグループ、および、筑波大学の工藤博氏のグループによって重要な実験結果が発表されている。そのため、両グループから実験データの提供を受けて本研究の理論計算に活かすこと、および、本研究の計算結果を実験に反映させること、の2点で協力しあう体制をつくった。また、二次電子放出に関しては、詳細な実験的研究を行っている奈良女子大学の小川英巳博士との協力も推進した。具体的には以下のように暑かった。

(1) 複数原子イオンの平均電荷と電子分布
入射クラスターイオンは、媒質中でのイオン核や電子との衝突により電離される。原子1個あたりの平均電荷数は、通常、イオンの速さのみによって決まり、標的物質にはあまり依存しない。複数原子イオン入射の場合には、周辺のイオンの電場の影響で、同じ速さの孤立イオンの場合よりはイオン1個あたりの平均電荷は小さい。この「平均電荷におけるクラスター効果」をわれわれの理論で取り入れた。この理論では、クラスターの空間構造によってもクラスターの1原子あたりの平均電荷が異なる。複数原子イオンは、個々の孤立原子の集合として記述した。ただし、各原子は統計モデルに基づいた電子分布を有する荷電粒子として扱った。

(2) 標的媒質電子系

本研究に関する実験では標的物質として炭素薄膜が使われることが多い。また、二次電子放出でも伝導電子の励起が主であることから、われわれは標的電子系を電子ガスモデルで記述することにした。電子の数密度はプラズマ振動数から決定される。荷電粒子に対する電子ガスの応答は、動的誘電関数が支配する。電子ガス系の励起モードには、個別励起と集団励起（プラスモン励起）があるので、それらの両方を考慮する必要がある。また、プラスモンの寿命も考慮した。

以上のアイデアを基に、本研究者は理論的手法とコンピュータを使ってモデルの構築を行い、その結果や途中経過の検討に際しては、原子力機構高崎量子応用研究所の斉藤氏のグループ、筑波大学の工藤氏のグループを年に数回ずつ訪問することによって研究を進めた。

4. 研究成果

2007年度から2009年度まで研究を行ったので、各年度別に成果を述べる。

2007年度は、エネルギー損失と平均電荷に関して次の実績を得た。入射エネルギー3 MeVの C_3^+ クラスターが炭素薄膜を通過後に解離したイオンの平均電荷とその空間構造依存性を調べた。これは、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所（以後、高崎研）のグループによって実験データが初めて報告されたため、筆者は、高崎研のグループとの討論を経て理論面から解析をすすめた。その結果、 C_3^+ が線状構造の方が三角構造よりも平均電荷が大きいこと、および、線状構造では両端のイオンの方が真ん中のイオンよりも平均電荷が大きいことの2点について実験結果と一致した。この理論解析には、固体標的中での各イオンの平均電荷をわれわれのクラスター平均電荷理論で評価し、入射粒子間のクーロン爆発のほかに標的物質の電子分極による抵抗力（ウエイク力）を導入した。この成果は、共著論文として発表された。このほか、遮蔽効果に関連して、奈良女子大学のグループと共同で、高速陽子および高速中性水素照射下での炭素薄膜の前方および後方から放出される2次電子収量の実験データを解析して共著論文を作成した。また、標的原子の多重電離についても解析を進めた。

2008年度は、前年度の研究を発展させるべく、クラスターイオン照射下でのエネルギー付与、電荷分布および二次電子放出における「クラスター効果」に関する研究を進展させた。エネルギー付与に関しては、媒質電子の分極力を取り入れて、1原子あたり0.5~1 MeV程度の炭素クラスターイオンが炭素薄膜を通過したときのエネルギー損失量を計算した。その結果、単一炭素イオンに対する相対エネルギー損失値は、粒子数Nの増加とともに減少するが、N=3と4では差異がないことがわかった。これは、工藤氏らの筑波大学グループによる実験データと非常によく一致していた。この結果は、エネルギー損失における「負のクラスター効果」の存在を初めて明確にする意義深いものである。また、平均電荷に関してミクロの立場からの研究を進めるため、電子捕獲と電子損失の断面積から電荷分布を導出する理論の構築に着手し、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所の斎藤氏のグループが測定した1 MeV炭素イオンの電荷分布を、我々の理論でほぼ再現することができた。今後は、クラスターとしての特徴をこの理論に取り込む。この電荷分布と、2原子炭素クラスターのクーロン爆発での散乱角、核間距離との相関も斎藤氏らと共同で解析している。さらに、二次電子放出に関しては、素過程研究の

立場から奈良女子大学の小川氏らと共同で、二次電子収量における励起電子の平均自由行程やカスケードの効果、入射荷電状態の影響などを調べ、発表した。また、工藤氏ら実験的に報告したが未解決である「前方での二次電子収量の低下」に関して、定性的には解釈できたので、以後定量的な説明を目指した。

2009年度は、二次電子放出率の弱線形性（すなわち、負のクラスター効果）について研究した。1原子あたり0.5 MeVの入射エネルギーで C_n^+ （ $n=1-8$ ）イオンを炭素薄膜に照射して、放出された二次電子の収率 $Y(n)$ が粒子数 n に対して線形よりも弱い依存性

$$Y(n)/Y(1) = 1 + a(n-1)$$

（ $a=0.2-0.4$ ）を示す実験データが工藤ら（筑波大）によって報告されていた。この研究では、入射粒子による励起電子の生成、励起電子の出口表面までの伝播、表面ポテンシャルからの脱出、という従来の「3段階過程」に加えて、励起電子が出口表面まで伝播する間にクラスター構成粒子による散乱の抑制効果を取り入れた結果、 $a=0.2-0.4$ を示すことができた。次に、クラスターのエネルギー損失に関する弱線形性について研究した。1原子あたり0.5 MeV程度の入射エネルギーで C_n^+ （ $n=1-6$ ）イオンが炭素薄膜を通過したときのエネルギー損失量 $S(n)$ の単原子イオン入射のエネルギー損失量 $S(1)$ に対する比が0.94程度まで低下して「負のクラスター効果」を出現させることを示した。この計算では、薄膜中でのクラスター粒子間のクーロン爆発、クラスターの平均電荷の低下、電子分極によるクラスターの変形の効果を取り入れた。ただし、小角多重散乱の寄与は小さかった。クラスターの形状は原子間距離が1.27 Åの線状構造を仮定して、クラスター軸と進行方向のなす角を変えて分子動力学法で計算した。上記のエネルギー損失比の値は、実験データとよく一致することがわかった。また、 C_{60} フラーレンイオンに対する炭素の阻止能を、イオンの速さ $v/v_b=0.4-3.0$ （ v_b はボーア速度）の範囲で計算した。クーロン爆発等による粒子間距離の増大を考慮して、 C_{60} の半径が0.35, 0.42, 0.53 nmの3つの場合を想定した。その結果、平均電荷比は速度依存性があり0.6を最小として速度の増大とともに1に向かって増大すること、阻止能は単一イオンとは異なった速度依存性を示すこと、などがわかった。これらの結果は学会発表されている。

この研究で得られた結果は、国の内外を問わず、複数原子イオン照射における電子励起過程の解釈や実験の方向性に少なからぬ影響を与えるものと思われる。

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 11 件)

- ① H.Kudo, H.Arai, S.Tomita, S.Ishii, T. Kaneko
「Electron emission from surfaces bombarded by MeV atom clusters」
Vacuum 84 (2010) 1014-1017 (査読有)
- ② 金子敏明,
「高速クラスターイオン照射による標的電子励起の非線形効果」(査読無)
HIMAC-133 (National Institute of Radiological Sciences) (2009) 26-28
- ③ T.Kaneko, H.Kudo, S.Tomita
「Sub-linear effect in kinetic secondary electron emission induced by MeV/atom carbon cluster bombardment」
5-th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling (abstract book) (2009) 71-71 (査読無)
- ④ 千葉敦也、斉藤勇一、山田圭介、鳴海一雅、高橋康之、金子敏明
「炭素薄膜を通過した解離C2イオン出射角分布の解析」(査読無)
第4回高崎量子応用研究シンポジウム要旨集(日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所)(2009) 188-188
- ⑤ H.Ogawa, M.Sonoda, Y.Inoue, K.Ishii, T.Kaneko
「Forward-backward correlation in secondary electron emission from a thin carbon foil by frozen-charged H⁺ and H⁰ penetration」
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B267 (2009) 2612-2615 (査読有)
- ⑥ Y.Saitoh, A.Chiba, K.Yamada, K.Narumi, Y.Takahashi, S.Seki, K.Hirata, A.Iwase, T.Kaneko, H.Shibata
「Status of MeV Energy Cluster ion Acceleration and its application at TIARA」(査読無)
Extended abstracts of 9th Workshop on Cluster Ion Beam Technology (2009)
- ⑦ M. Adachi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, K. Yamada, and T. Kaneko
「Monte carlo particle trajectory simulation for classification of C3+ cluster ion structure utilizing coulomb explosion technique」
Radiation Physics and Chemistry 77 (2008) 1328-1332 (査読有)
- ⑧ A.Chiba, Y.Saitoh, K.Narumi, M Adachi, K.Yamada, T. Kaneko
「Simultaneous Measurement of Charge States and Emission Angle of C2+ Fragments Emerging from a Thin Carbon Foil」(査読無)
JAEA (Japan Atomic Energy Agency)-Review 2008-055 (2008) 174-174
- ⑨ Atsuya Chiba, Yuichi Saitoh, Kazumasa Narumi, Masahiro Adachi and Toshiaki Kaneko
「Average charge and its structure dependence of fragment ions under irradiation of a thin carbon foil with a 1-MeV/atom C3+ cluster ion」
Physical Review A76 (2007) 063201-1 ~ 063201-6 (査読有)
- ⑩ H. Ogawa, T. Ohata, K. Ishii, N.Saka-moto, T. Kaneko
「Dependence of secondary-electron Emission on the emergent angle of frozen-charged H⁰ and H⁺ projectiles penetrating a thin carbon foil」
Physical Review A 76 (2007) 024901-1 ~ 024901-4 (査読有)
- ⑪ Toshiaki Kaneko, Takao Wada
「Contracted-Independent-Electron Model study of multiple ionization of Atoms by swift ion impacts」(査読有)
The Bulletin of Okayama University of Science 43A (2007) 17-25

[学会発表] (計 30 件)

- ① 金子敏明、工藤博、富田成夫
「MeV クラスターイオン照射下での低速2次電子放出率の弱線形性」
日本物理学会第65回年次大会
2010年3月20日
岡山大学 津島キャンパス
- ② 大内崇嗣、金子敏明、小川英巳
「高速荷電凍結水素イオン入射での固体薄膜からの低速2次電子放出」
日本物理学会第65回年次大会
2010年3月20日
岡山大学 津島キャンパス
- ③ 大内崇嗣、米子佳江、高橋聖来、草苺裕子、金子敏明
「高速 H⁺, H⁰ 入射での炭素薄膜からの2次電子放出」
フォーラム 21「イオンビームを用いた物理とその応用」研究会
2010年1月9日
奈良女子大学 理学部 G 棟

- ④ T.Kaneko, H.Kudo, S.Tomita
「Sub-linear effect in kinetic secondary electron emission induced by MeV/atom carbon cluster bombardment」
5-th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling
November 17, 2009
Kyoto Garden Palace
- ⑤ 千葉敦也、斉藤勇一、山田圭介、鳴海一雅、高橋康之、金子敏明
「炭素薄膜を通過した解離C2イオン出射角分布の解析」
第4回高崎量子応用研究シンポジウム
2009年10月9日
高崎シティギャラリー
- ⑥ 金子敏明、高橋聖来、大内崇嗣、米子佳江
「高速炭素クラスターイオンに対する炭素薄膜の阻止能計算」
日本物理学会2009年秋季大会
2009年9月25日
熊本大学 黒髪キャンパス
- ⑦ 金子敏明
「クラスター衝撃2次電子放出における sublinear effect」
日本物理学会2009年秋季大会
2009年9月25日
熊本大学 黒髪キャンパス
- ⑧ 千葉敦也、斉藤勇一、山田圭介、鳴海一雅、高橋康之、金子敏明
「薄膜を透過した2原子クラスターイオンの発散角と電荷の同時測定」
日本物理学会2009年秋季大会
2009年9月25日
熊本大学 黒髪キャンパス
- ⑨ 島田亜衣子、井上洋子、小川英巳、石井邦和、金子敏明
「陽子および水素入射による炭素薄膜からの前方と後方への二次電子放出の相関」
日本物理学会2009年秋季大会
2009年9月25日
熊本大学 黒髪キャンパス
- ⑩ 小方厚、近藤隆文、法澤公寛、楊金峰、吉田陽一、金子敏明
「アト秒電子線の生成とその集団効果」
高LET放射線研究会
2009年7月31日
東京大学 本郷キャンパス
- ⑪ 金子敏明
「高速クラスターイオン照射による標的電子励起の非線形効果」
高LET放射線研究会
2009年7月30日
東京大学 本郷キャンパス
- ⑫ 金子敏明、光田敦俊、高橋聖来、大内崇嗣
「MeVクラスターイオンビームによる固体標的へのエネルギー付与」
日本物理学会第64回年次大会
2009年3月27日
立教学園池袋キャンパス(東京)
- ⑬ Y.Saitoh, A.Chiba, K.Yamada, K.Narumi, Y.Takahashi, S.Seki, K.Hirata, A.Iwase, T.Kaneko, H.Shibata
「Status of MeV Energy Cluster Ion Acceleration and its application at TIARA」
9th Workshop on Cluster Ion Beam Technology
2009年3月12日
産業技術総合研究所臨海副都心センター別館
- ⑭ 光田敦俊、高橋聖来、大内崇嗣、金子敏明
「炭素薄膜を通過するMeV炭素イオンの荷電比率」
フォーラム21「イオンビームを用いた物理とその応用」研究会
2009年1月10日
京都大学宇治キャンパス
- ⑮ 園田未来、井上洋子、小川英巳、石井邦和、金子敏明
「水素及び陽子透過による炭素薄膜からの2次電子放出における前方-後方相関」
フォーラム21「イオンビームを用いた物理とその応用」研究会
2009年1月10日
京都大学宇治キャンパス
- ⑯ 金子敏明、光田敦俊、高橋聖来、大内崇嗣
「MeV炭素クラスタービームによる固体薄膜へのエネルギー付与」
第9回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会
2008年12月6日
高知工科大学
- ⑰ 金子敏明
「固体を通過する高速イオンによる電子励起過程と粒子数効果」
原子衝突若手の会第29回秋の学校
2008年10月12~13日
京都府立ゼミナールハウス(京都市)
- ⑱ 小川英巳、園田未来、井上洋子、石井邦和、金子敏明
「等速の陽子及び電子照射による炭素薄膜からの2次電子放出」
日本物理学会2008年秋季大会
2008年9月22日
岩手大学上田キャンパス
- ⑲ 金子敏明
「高速クラスターイオン照射による

固体電子励起の非線形性」
特別講演会

2008年8月21日
大阪大学産業科学研究所

- ⑳ 園田未来、井上洋子、小川英巳、石井邦和、坂本直樹、金子敏明
「ビーム透過による炭素薄膜からの前方と後方への二次電子放出の同時計測」
日本物理学会第63回年次大会
2008年3月23日
近畿大学本部キャンパス

- ㉑ 高橋聖来、金子敏明
「薄膜透過後のクラスターイオンの空間配置と平均電荷」
フォーラム21「イオンビームを用いた物理とその応用」研究会
2008年1月12日
大阪府立大学 学術交流会館

- ㉒ 金子敏明、小杉晋也、澤田陽子、光田敦俊、小川英巳、石井邦和、坂本直樹
「MeV領域のH⁺、H⁰衝撃でのエネルギー損失と2次電子励起」
第8回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会
2007年12月8日
東北大学金属材料研究所

- ㉓ K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, M. Adachi, H. Naramoto, S. Seki, K. Hirata, A. Iwase, T. Kaneko, H. Shibata
「Studies on radiation effect of MeV cluster ions at JAEA/TAKASAKI」
第8回クラスターイオンビームテクノロジーに関する国際ワークショップ
2007年11月21日
東京

- ㉔ M. Adachi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, K. Yamada, T. Kaneko
「Monte carlo particle trajectory simulation for classification of C3+ cluster ion structure utilizing coulomb explosion imaging」
ASR2007 'Charged Particle and Photon Interactions with Matter'
2007年11月6-9日
原子力機構(茨城県東海村)

- ㉕ 園田未来、井上洋子、小川英巳、石井邦和、坂本直樹、金子敏明
「ビーム透過による炭素薄膜からの前方と後方への二次電子放出の同時計測」
京都大学工学研究科附属量子理工学研究実験センター第8回公開シンポジウム
2007年10月19日
京都大学宇治キャンパス

- ㉖ 阿達正浩、斉藤勇一、千葉敦也、鳴海一雅、山田圭介、金子敏明

「粒子軌道計算による高速C3クラスターイオンの構造選別高精度化に関する研究」

日本物理学会第62回年次大会
2007年9月21日
北海道大学札幌キャンパス

- ㉗ 金子敏明
「固体薄膜を通過する高速クラスターイオンの変形とエネルギー付与」
日本物理学会第62回年次大会
2007年9月21日
北海道大学札幌キャンパス

- ㉘ 金子敏明、小杉晋也、澤田陽子、光田敦俊
「局所電子密度法によるMeV領域のH⁺およびH⁰のエネルギー損失の衝突径数依存」
日本物理学会第62回年次大会
2007年9月21日
北海道大学札幌キャンパス

- ㉙ 小川英巳、大畑珠代、石井邦和、坂本直樹、金子敏明
「荷電凍結したH⁰透過による炭素薄膜からの2次電子収量におけるH⁰の出射角に対する依存性」
日本物理学会第62回年次大会
2007年9月21日
北海道大学札幌キャンパス

- ㉚ 阿達正浩、斉藤勇一、千葉敦也、山田圭介、鳴海一雅、金子敏明
「クラスターイオン構造選別のための粒子軌道計算」
第2回高崎量子応用研究シンポジウム
2007年6月21日
高崎シティーギャラリー

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
金子 敏明 (KANEKO TOSHIAKI)
岡山理科大学・理学部・教授
研究者番号：40158853

- (2) 研究分担者 ()

研究者番号：

- (3) 連携研究者 ()

研究者番号：