

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 3 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420912

研究課題名(和文) 高速クラスターイオンのガス相との相互作用の研究

研究課題名(英文) Study on interaction of swift cluster ions with gases

研究代表者

齋藤 勇一 (saitoh, yuichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部
・次長

研究者番号：40360424

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：タンデム加速器で加速したクラスターイオンの解離・荷電変換断面積(それぞれ d 、 p)を求め、構造の影響を強く受けると考えられる d について比較した。その結果、鎖状の炭素クラスターが加速過程で配向している可能性が示唆された。また、荷電変換相互作用をさせたクラスターイオンの配向を測定した。その結果、解離断面積の異なるガスターゲットを通過した鎖状クラスターの配向分布に違いが観測された。

研究成果の概要(英文)：Charge exchange cross section (p) and collisional destruction cross section (d) with several gas targets were obtained for linear-chain form cluster, C2 - C10, and cage form cluster, C60, in MeV energy using a charge exchange section in a tandem accelerator. The result suggests that linear-chain cluster ions tend to be oriented to a beam axis in the accelerator. We measured orientational distribution of C2 ions to a beam axis after colliding with target gases in the accelerator using a cluster ion orientation measurement system. As a result, orientational distributions depended on a target gas. These results suggest that a geometrical cross section of cluster ion might be important parameter as charge exchange and destruction interactions of cluster ions with gases.

研究分野：放射線物理

キーワード：クラスターイオン MeVエネルギー タンデム加速器 荷電変換断面積 解離断面積

1. 研究開始当初の背景

申請者らは、超高 LET (線エネルギー付与) という特徴を持つ量子ビームとして、照射による局所的な高密度プラズマ状態を利用した材料創製や固体表面分析技術[1]等への応用が期待される、MeV エネルギー領域のクラスターイオンビームについて、イオン発生法及び効率的な加速方法の開発、並びに固体との相互作用の研究、及びその特徴を利用した照射技術の開発を行っている。これらを効率的にさらに進めるための基盤となる相互作用のメカニズムに迫るためには、衝突による解離・荷電変換過程が観測可能な気体との衝突メカニズムの研究が不可欠となる。

2. 研究の目的

MeV エネルギー領域の高速クラスターイオンの衝突現象は、生命の素となる有機物の宇宙空間での合成や材料創製、クラスターを一次イオンとした表面分析法への応用などとして注目されている。しかし、クラスターイオンは、単原子イオンと異なり幾何学的構造を持つため、気体や固体などとの相互作用がより複雑になり、その詳細な反応機構は不明である。本研究では、MeV エネルギー領域のクラスターイオンとガス標的との反応機構の解明を目的とし、クラスターの幾何学的構造に着目して、解離・荷電変換断面積を指標に、衝突の角度などのこれまで平均化されていた情報も詳細に取得することにより、衝突過程のモデルを構築し、クラスターイオンと物質との相互作用の解明に資する。

3. 研究の方法

解離の割合は、ガスの種類とイオン種及びエネルギーに依存すると考えられる。クラスターイオンの場合はこれらに加えて、分子的構造を持つことに由来する、どのような角度で衝突するか配向角も解離断面積に大きく影響すると考えた。そこで、クラスターイオンとガス標的との衝突による、解離断面積・荷電変換断面積等を指標として、イオン種、構成原子数、及びエネルギーに加えて、衝突時のクラスター形状も加味して、反応機構を考察することを着想した。本研究では、タンデム加速器の荷電変換システムを利用して、MeV エネルギー領域クラスターイオンの解離断面積、荷電変換断面積などを測定した。具体的には、タンデム加速器の荷電変換ガスを標的に利用して、加速器に入射した負イオン量とガスと相互作用して、クラスター構成原子数を変えずに正イオンになったイオン量の比をガス圧の関数として測定した。ガス圧を原子密度(ρ_s)に換算したグラフを荷電変換断面積(生成断面積)(σ_p)と解離断面積(σ_d)を仮定したレート方程式でフィッティングすることにより、 σ_p と σ_d を導出した(図1)。ガスとの衝突は、加速器の高電圧ターミナル内で行われるが、ガス圧は加速器グランド側で計測されているため、あらかじ

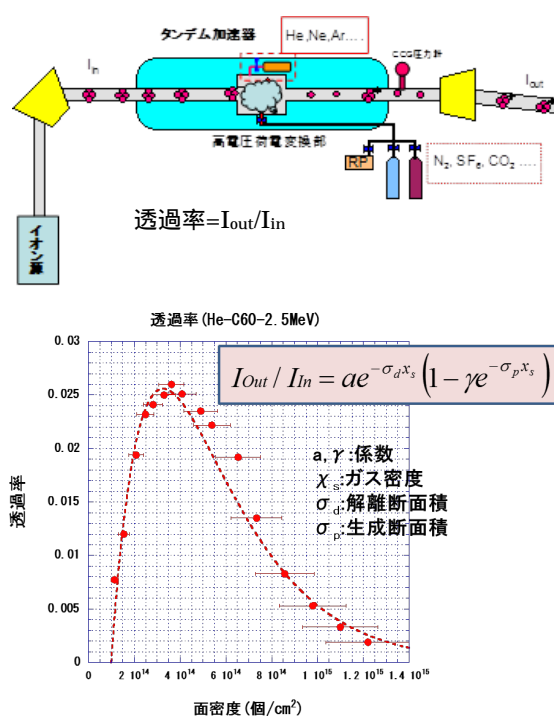


図1 解離・荷電変換断面積測定のための測定

め、ガス圧計測値を加速器高電圧上のガス密度に変換する係数を断面積が既知の単原子イオンの荷電変換の割合を測定することにより求めた。また、独自に開発した2原子イオン配向角・電荷同時測定システム[2]を用いて、タンデム荷電変換ガスをガス標的として、ガスとの衝突で解離せずに荷電変換された2原子イオンに対して、標的ガスの種類を変えて配向角を測定した。具体的には、タンデム加速器の荷電変換ガスとの衝突で負イオンから正イオンに解離することなく荷電変換されて MeV 領域のエネルギーになった2原子イオンを、炭素薄膜を通過させることによりクーロン爆発した解離イオンを蛍光体付 MCP で検出し、その位置から薄膜衝突直後のクラスターイオンの配向角を見積もった(図2)。

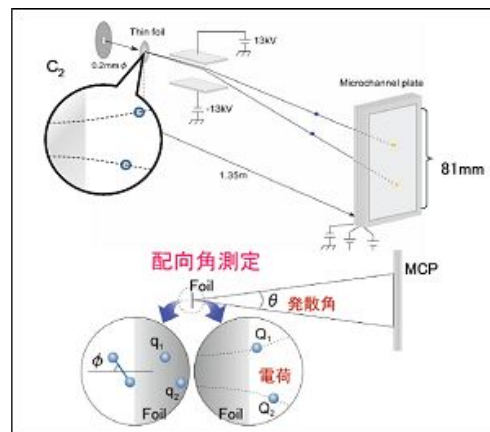


図2 2 原子イオン配向角・電荷同時測定法

4. 研究成果

幾何学的構造の異なるクラスターイオンの解離・荷電変換断面積(それぞれ σ_d , σ_p)を、タンデム加速器を利用した実験から求め、構造の影響を強く受けると考えられる σ_d について比較した。具体的にはヘリウム(He)、ネオン(Ne)、キセノン(Xe)を標的として鎖状クラスターイオンである炭素クラスター(C_4 - C_{10})と籠状クラスターイオンであるフラレン(C_{60} : Heのみ)について、ガス圧を変化させて測定しイオンのタンデム加速器透過率の変化から σ_d と σ_p を求めた。その結果、フラレンの σ_d はその物理的サイズである直径 0.7nm とした投影面積とほぼ一致した。一方、鎖状クラスターの場合、衝突時の配向をランダムと仮定したときの平均の投影面積(図3点線)と比較して、測定値は小さかった。これは、鎖状の炭素クラスターがガスとの衝突時に、加速過程の電場の作用などで、ビーム軸方向に配向していたことを示唆するものではないかと考えられるが、さらなる検証が必要である。

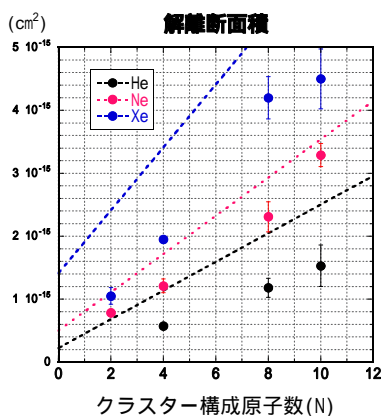


図3 鎖状炭素クラスター(C_2 - C_{10})の解離断面積。点線は配向がランダムと仮定したときの投影面積計算値。

また、測定系の高度化として、タンデム加速器荷電変換ガスをターゲットとするシステムに加えて、2原子イオン配向角・電荷同時測定システムの直前に、ガス標的としてパルスガスジェット方式及び精密微小流量バルブを用いた一定流量方式の2方式について構築し、予備実験を行った。その結果パルス式はベース真空度の維持に有利であるが流量の制御が困難で、また、一定流量方式は流量の制御は容易だが、ベース真空度の悪化が避けられなかった。これらのガスタargetシステムについては今期限内では、利用できなかったが、タンデム加速器荷電変換ガスタargetにより、代用することができた。今後、更に開発を進める。

次に、ガスタarget通過により、鎖状クラスターイオンが配向しているかを、2原子イオン配向角・電荷同時測定システムを用

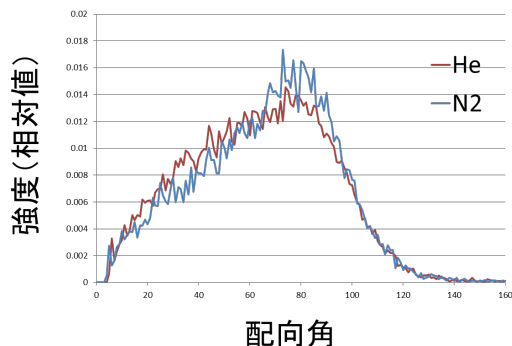


図4 C_2 イオン配向角分布。

いて、ターゲットのガス種やその圧力を変化させて入射クラスターイオンの配向測定を行った。具体的には5 MeVの C_2 イオンについて、窒素(N_2)とHeのガスタarget通過後の配向角を調べた。その結果、ガスタargetが同じ場合、ガス圧を変化させても配向角の分布は変化しなかったが、解離断面積の異なる N_2 とHeガスタargetを比較した場合、2分子イオンの配向角分布に違いが観測された(図4)。 N_2 に対してHeのほうがビーム軸にわずかに配向していることが示された。これは、ガスタargetの一原子(分子)のサイズを考えると、サイズの大きな N_2 のほうが、投影面積が小さくなるビーム軸に配向した C_2 イオンが選択的に残るのではという予想と異なる結果となった。これについては、今後、更にいくつかのガスタargetについて実験データを蓄積し、そのメカニズムを明らかにしていく。

以上のことより、クラスターという立体構造を持つイオンがガスタargetと相互作用をするとき、クラスターの配向が重要なパラメータとなることが示唆された。

【理論的考察】

高速クラスターイオンが気体標的を通過する際の電子励起過程に関する以下のような検討をおこなった。タンデム加速器でのクラスターイオン生成には、荷電変換領域における気体との衝突のためにクラスターの生成のみでなく分解も起こる。このために、クラスターイオンを効率よく生成するには荷電変換気体の種類と圧力を最適化する必要がある。この問題に関する実験データを理論面から考えた。レート方程式から出発していくつかの近似を行うと1価の正のクラスターの収率は、生成断面積と分解断面積の2つの量で支配される。試みに、ここでは、衝突径数法を用いて C_2 クラスターイオンの分解確率と生成確率を計算し、それらからそれぞれの断面積を計算した。その結果、クラスターの配向依存性が現れた。 C_2 クラスターは2つのC原子の集まりであると考え、HFの波動関数で記述される1s, 2s, 2p状態を仮定した。計算値は、図3に示した希ガス実験デー

夕の値に近いものとなった。しかし、分解断面積においては、電離される2つ以上の軌道電子の組み合わせ方に制限を加えたことや近似で無視した項の見積もりなど課題も見つかったので、今後、さらに検討する必要がある。

<引用文献>

[1] K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, S. Matoba, and K. Narumi, Rev. Sci. Instrum., 85 (2014) 033107.

[2] A. Chiba, Y. Saitoh, et. al., Phys. Rev. A 76, 063201 (2007)

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 0件)

〔学会発表〕(計 5件)

福島将太郎、宮本大輔、山下祐介、金子敏明、斎藤勇二

「気体との衝突における炭素クラスターの電離」

日本物理学会第71回年次大会、2016年3月20日、東北学院大学(宮城県仙台市)

山下祐介、福島将太郎、宮本大輔、金子敏明、斎藤勇二

「気体との衝突における炭素クラスターの解離」

日本物理学会第71回年次大会、2016年3月20日、東北学院大学(宮城県仙台市)

宮本大輔、福島将太郎、山下祐介、金子敏明、小川英巳、斎藤勇二、鳴海一雅、千葉敦也

「高速 C2 クラスターイオン入射による炭素薄膜からの前方2次電子放出」

日本物理学会第71回年次大会、2016年3月20日、東北学院大学(宮城県仙台市)

Y. Saitoh, A. Chiba, A. Usui, K. Yamada, S. Matoba, K. Narumi

“Transmission ratios of carbon cluster ions through a tandem accelerator”, International Conference on Atomic Collisions in Solids (ICACS-26), 2014/7/13-19, Debrecen (Hungary)

斎藤勇二、千葉敦也、薄井絢、山田圭介、鳴海一雅

「C60 イオンのタンデム加速器透過率」

日本物理学会第69回年次会、2014年3月28日、東海大学湘南キャンパス(神奈川県平塚市)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

斎藤勇一(SAITOH, Yuichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部・次長
研究者番号：40360424

(2)研究分担者

金子敏明(KANEKO, Toshiaki)

岡山理科大学・理学部・教授
研究者番号：40158853

(3)連携研究者

千葉敦也(CHIBA, Atsuya)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部・研究副主幹
研究者番号：40370431