

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25820452

研究課題名(和文) 分子軸配向ビームを用いた近接効果発現機構の解明

研究課題名(英文) Investigation of generating mechanism of vicinage effect using oriented molecular ion beams

研究代表者

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  
・研究員

研究者番号：40370431

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：複数の原子が結合したクラスターイオンが高速で固体と衝突する場合、従来の単原子イオン衝突とは異なる未解明な物理過程が存在する。本研究では、クラスターイオン 固体衝突において発現する物理現象について、クラスターの構造や分子軸の角度(配向角)に対する依存性を調べた。また、研究の遂行にあたり、実験に用いる配向性ビーム及びC60負イオン生成技術の開発を行い、特にC60ビームは従来の1,000倍の強度を達成した。

研究成果の概要(英文)：In case that a swift cluster-ion bombards with a solid, there is one of the open-questions in the physical process which would not be generated in the monatomic-ion / solid interaction. In this study, we investigated the cluster structure or molecular orientation dependence of the physical phenomena generated in the cluster / solid interaction. In order to demonstrate these dependences, we developed the orientated beam of the cluster ions and the generating technique of the negative C60 ions, and especially the intensity of C60 ion beam by the new method became one-thousand-times higher than that by the existing method.

研究分野：放射線物理

キーワード：クラスターイオン 分子固体衝突 フラレーンイオン 近接効果

### 1. 研究開始当初の背景

分子やスラスタなどの衝突反応過程を理解することは、身近な化学反応から生命の進化、更には宇宙空間に存在する分子進化など様々な研究において重要な基礎となる。MeV 級のエネルギーを持つクラスターイオンの衝突反応過程では、固体内で解離した複数のイオンが時間空間的に近接しているため ( $\sim$  fs,  $\sim$  Å) 各解離イオンは近接する他のイオンの静電ポテンシャルや、イオンの軌跡に沿って誘起されるウェイクポテンシャルなどの影響を受ける。こうした複数原子による複雑な反応場で発現する作用は総じて近接効果と言われ、薄膜透過後の解離イオンのエネルギー損失や平均電荷、あるいはクラスターイオン衝突による 2 次イオンや 2 次電子生成量などで観測されてきた。これまでに、研究代表者は、クラスターイオン衝突における表面反応素過程の解明を目指し、 $C_3^+$  を対象として、薄膜透過後の解離イオンの平均電荷における近接効果を測定し、その構造 (環状と直鎖状) 依存性を初めて明らかにし、更にそれが構造による核間距離の僅かな違いによるものであることを理論的に示した (A. Chiba *et al.*, Phys. Rev. A 76 (2007) 063201.)。核間距離は、近接効果における静電ポテンシャルの寄与の大きさを支配すると考えられる一方、ウェイクポテンシャルの近接効果における寄与の大きさは、入射イオンの進行方向と解離イオン間を結ぶ直線のなす角 (配向角) に依存すると考えられる。こうした依存性を実験により明らかにすることは、クラスターイオンと固体との衝突素過程の理解に繋がる。しかしながら、これまでに、高速クラスターイオンの核間距離や配向を制御し、あるいは、核間距離または入射配向と 2 次イオン生成量や平均電荷などの物理量を同時に測定することは極めて困難であり、近接効果のこれらに対する依存性は実証されていない。

### 2. 研究の目的

クラスターイオンと固体との相互作用における近接効果の発現機構の解明を目的とする。特に固体内で解離したイオン間の核間距離や配向角と近接効果の関係を実験的に明らかにする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 近接効果の配向依存性

タンデム加速器の荷電変換ガスに対するクラスターの解離断面積に関する研究 (Y. Saitoh, A. Chiba *et al.*, Rev. Sci. Inst. 80 (2009) 106104.) で示唆した、ガスとの相互作用による解離断面積の配向依存性を利用して、直鎖配向クラスター (分子軸が進行方向に平行) がビームに含まれる存在比を変えることで、入射配向を制御した配向性の高いクラスタービームの形成を試みた。これまでの研究で、 $N_2$  などの分子ガスに比べ、He

などの単原子ガスの方が透過率 (解離せずにガスターゲットを透過したクラスターの割合) が高く、クラスターを構成する原子数が多いほど透過率が低くなることが分かった。これは、解離断面積がガス粒子の大きさとガス粒子から見たクラスターの前面投影面積に比例すると考えられる。即ち、ターゲットガスとの相互作用において、直鎖配向クラスターの解離断面積が最も小さくなるため、ガスを透過したビームに含まれる直鎖配向クラスターの存在比が増加することになる。そこで、ガスターゲットを解離せずに透過したクラスターイオン ( $C_2^+$ ) の配向角をガス流量を変えながらクーロン爆発イメージ法により評価した。実験系を図 1 に示す。ターゲットガスとの衝突で解離したイオンは本来の軌道から逸脱するため、ビーム軸上に設置したピンホールスリットを通過できない。一方、解離せずにガスターゲットを透過したクラスターはスリットを通過後、薄膜に入射し、数原子層の内に電子が剥がれクーロン爆発する。薄膜を出た解離イオンは核間距離を広げながら蛍光出力型マイクロチャンネルプレート (MCP) で位置検出される。MCP 背面で発光点として表示された解離イオンの空間分布を CMOS カメラで画像データとして取得した。図 2 の模式図に示すように薄膜透過後の解離イオンの発散角は  $C_2^+$  イオンの配向角に対応する。そこで MCP 背面の 2 つの発光点の距離から発散角を求め、ビームの配向性を評価した。

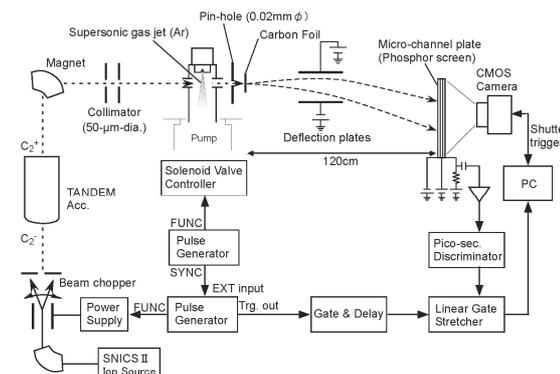


図 1. 実験系の概略図

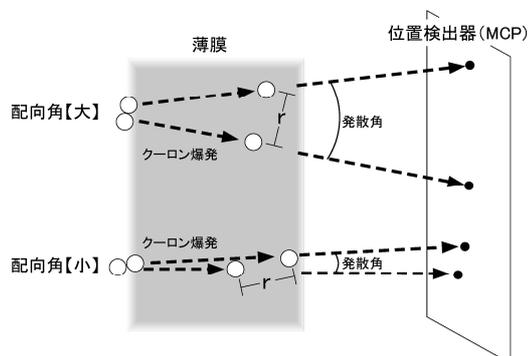


図 2. 配向角と解離イオンの発散角の関係

## (2) 近接効果の核間距離依存性

### - $C_{60}$ イオンビームの高強度化-

近接効果を核間距離のみで評価するためには、クラスターのサイズだけではなく、構造や配向角が揃っていることが望ましい。そこで、構造の均一性と対称性に優れており、配向角を考慮する必要のない  $C_{60}$  フラーレンを用いることを考えた。ガス透過後の励起状態にある  $C_{60}$  の平均核間距離はクーロン爆発イメージ法により評価する。ガスを透過する際に解離しなかった  $C_{60}$  だけを選別し、薄膜誘起解離した  $C_{60}$  の空間拡散分布をイメージから解析するには大量のイベントが必要となる。しかしながら、MeV 級  $C_{60}$  のビーム強度は数万 cps と極めて少なく、ビーム調整が長時間に及び上、有効なデータを収集することは現実的に困難な状況にあった。 $C_{60}$  イオンビームの高強度化が急務となったため、既存イオン源を利用した新たな  $C_{60}$  イオン生成技術の開発を行った。

## 4. 研究成果

(1) ターゲットガス (Ar) を透過し、解離せずにピンホールスリットを通過した 6MeV、 $C_2^+$  イオンを厚さ  $2\mu\text{g}/\text{cm}^2$  の非晶質炭素薄膜に照射し、クーロン爆発した  $C_2$  の解離イオンの発散角をターゲットガスの有無で測定した結果を図 3 に示す。横軸は発散角、縦軸は各核間距離のイベント数 (全イベント数で規格化) である。ターゲットガスを透過した  $C_2^+$  イオンの方が、ターゲットガスを透過していないものに比べ、比較的发散角の小さいイベントの割合が増大した。この結果は、ターゲットガスとの相互作用において、解離断面積が  $C_2^+$  イオンの配向角に依存し、配向角が大きい  $C_2^+$  イオンほどターゲットガスとの衝突により解離する確率が増したことで、ピンホールスリットを通過した  $C_2^+$  ビームの配向性が増大した可能性を示すものである。

ガスを透過した配向性が高いと考えられる  $C_2^+$  ビームとガスを透過していない  $C_2^+$  ビームの薄膜透過後の解離イオンの平均電荷を比較すると、前者が  $3.14 \pm 0.03$  であり後者が  $3.11 \pm 0.02$  であった。配向性が増すこと

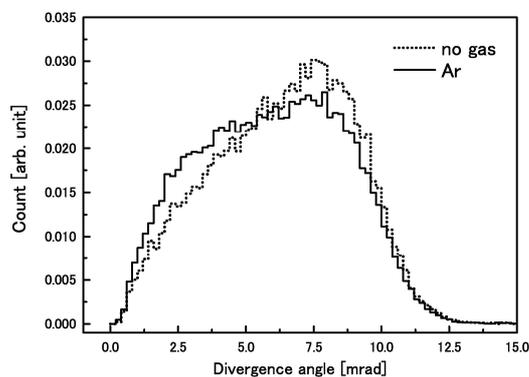


図 3. Ar ガスと透過させた場合 (実線) と透過させない場合 (点線) の  $C_2^+$  イオンが薄膜誘起解離した解離イオンの位置検出器 (MCP) 上の核間距離分布。

で近接効果に対するウエイクポテンシャルの寄与が大きくなり平均電荷はより小さくなると考えられたが、両者の平均電荷に有意な差が表れなかった。この結果は、ガスとの衝突で励起状態となって、或いはピンホールスリットを通過した後に解離して薄膜に入射する  $C_2^+$  イオンが多く存在したことによって生じた可能性がある。ガスとの衝突によって核間距離が増大したことで近接効果が減少し、平均電荷がむしろ大きくなったと考えられる。

そこで、ガスとの衝突で解離した  $C_2^+$  イオンの発散角分布から励起状態にある解離時の核間距離を考察した。He ガスとの衝突で解離したイオン ( $1e^+$  のペア) の発散角分布を図 4 に示す。解離イオンの発散角分布のピーク位置は、幾何学上、 $C_2$  の解離時の配向角が、進行方向に垂直であった場合の発散角に相当し、発散角の大きさは解離時の核間距離に依存する。同図のヒストグラムは、分子振動を考慮した粒子軌道計算による  $C_2$  の発散角分布であり、実線と破線では、初期条件となる解離時の核間距離分布が異なる。それぞれの解離時の核間距離分布を図 5 に示す。図 5 の破線で示した分布は、薄膜透過実験によって導出された  $C_2$  の解離時の核間距離分布であり、これを初期条件として計算した場合、図 4 の破線で示した発散角分布となる。一方、

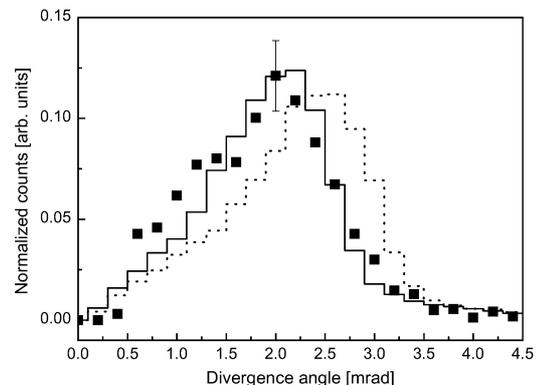


図 4. ガスとの衝突で解離した  $C_2$  構成イオンの発散角分布。 : 測定値、ヒストグラム: 計算値

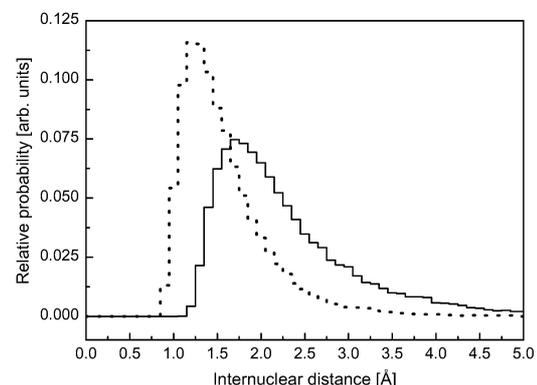


図 5. 発散角分布の計算で初期条件とした解離時の核間距離分布。図 4 の実線と破線で示した計算結果にそれぞれが対応する。

図5の実線で示した核間距離分布を初期条件として想定した場合、図4の実線で示した発散角分布となり、実験結果に概ね一致する。このことから、標的がガスの場合、標的原子との衝突からクーロン爆発に至るまでに、 $C_2$ の核間距離が増大していることが推察される。これらのことから、近接効果は配向性よりも核間距離により大きく依存すると考えられる。

(2) 従来のセシウムスパッター方式による $C_{60}^-$ イオンの生成法では、 $Cs^+$ イオンの衝突によって多くの $C_{60}$ が解離してしまうため、イオン源から引き出される $C_{60}^-$ イオンビームの強度は極めて少なく、タンデム加速器による加速後の $C_{60}^-$ イオンのビーム強度は数万 cpsとなる。そこで、既存のセシウムスパッター型負イオン源 (SNICS / National Electrostatics Corp.) による新たな $C_{60}^-$ イオンの生成法を考案した。生成原理の模式図を図6に示す。これは、赤熱状態にあるイオナイザー表面から放出される、従来方式では利用されてこなかった熱電子とオープンで昇華した $C_{60}$ との付着反応により $C_{60}^-$ を負イオン化するものであり、SNICS イオン源の革新的な活用法と言える。従来方式と電子付着方式によりSNICS イオン源で生成した $C_{60}^-$ イオンビームのマススペクトルを図7と図8にそれぞれ示す。従来方式ではスパッターで解離した $C_{60}$ のフラグメントイオンが多量に生成されていることが分かる。一方、電子付着方式では、9割以上が $C_{60}^-$ イオンであり、生成効率が極めて高い。また、イオン源立ち上げ後30分程度でオープン温度と共にビーム強度が安定し、従来の生成法に比べ1,000倍以上の強度(30nA)を約12時間に渡り生成可能であることを確認した。

今後は、 $C_2^+$ イオンの配向性ビームの核間距離について詳細に調べると同時に、 $C_{60}^+$ イオンビームを用いて、近接効果と核間距離の関係を定量的に評価する予定である。

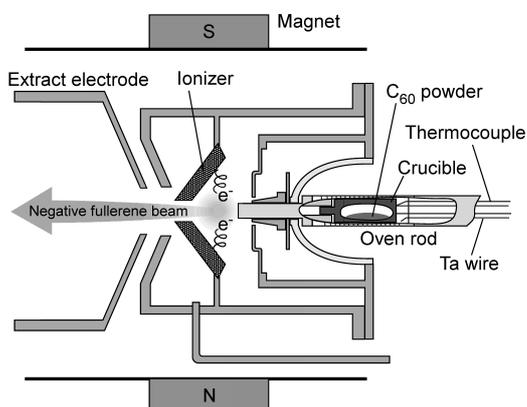


図6. 電子付着方式による $C_{60}^-$ 負イオン生成原理

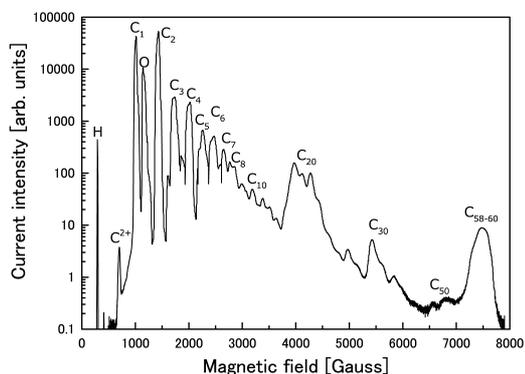


図7. 従来方式で生成した $C_{60}^-$ 負イオンビームのマススペクトル

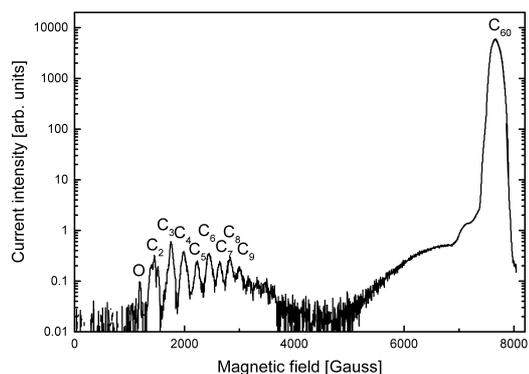


図8. 電子付着方式で生成した $C_{60}^-$ 負イオンビームのマススペクトル

## 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)

〔学会発表〕(計 3件)

千葉敦也、山田圭介、薄井絢、鳴海一雅、齋藤勇一、クラスターイオンの生成と加速、第52回アイソトープ・放射線研究発表会、2015年7月8日~7月10日、東京大学弥生講堂(東京都文京区)

千葉敦也、山田圭介、薄井絢、SNICSによるフラレン負イオンの生成、第28回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会、2015年7月3日~7月4日、東北大学(宮城県仙台市)

千葉敦也、薄井絢、山田圭介、セシウムスパッター型イオン源によるフラレン負イオンの新たな生成方法、第27回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会、2014年7月4日~5日、京都大学(京都府宇治市)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1件)

名称: フラレン及び有機高分子負イオン生成法

発明者: 千葉敦也、薄井絢、山田圭介

権利者: 日本原子力研究開発機構

種類：特許  
番号：特開 2015-185233  
出願年月日：平成 26 年 3 月 20 日  
国内外の別： 国内

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

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・研究員  
研究者番号：40370431