

令和元年6月10日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17543

研究課題名（和文）電子付着型高強度フラレン負イオン源の開発

研究課題名（英文）Development of an electron-attachment-type negative ion source

研究代表者

山田 圭介（Yamada, Keisuke）

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部・研究員（定常）

研究者番号：10414567

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、タンデム加速器に入射するフラレン(C60)負イオンビームの高強度化のため、電子付着型の新たな負イオン源の開発を行った。本イオン源は、昇華させたC60に低エネルギーの電子を付着させることにより負イオンを生成する。電子源にフィラメントを使用したイオン源を製作し、生成する負イオンのビーム強度を測定した結果、従来のセシウムスパッタ型イオン源と比較して4桁以上の高強度化に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

MeV級エネルギーのC60イオンビームは、極めて高い二次イオン収量を利用した高感度二次イオン分析や、重イオン照射では困難な無機材料中へのイオントラック形成を可能にし、分析技術及び新機能材料開発の新しいツールであるが、得られるビーム電流の低さがこれらの開発を進める上での課題となっていた。本研究成果により、タンデム加速器を用いて高強度のC60イオンビームの生成が可能となり、これら研究開発の加速・新展開が望める。

研究成果の概要（英文）：We have developed an electron-attachment-type negative fullerene (C60) ion source to intensify the incident negative ion beam current to a tandem accelerator. In this ion source, the sublimated C60 is negatively ionized by capturing a low-energy electron. An ion source with a filament as an electron source was constructed, and negative ion beam current extracted from the ion source was measured. In the result, the intensity of the negative C60 ion beam by the ion source became ten thousand times higher than that by the cesium sputter type ion source.

研究分野：イオン源工学

キーワード：負イオン源 フラレン

1. 研究開始当初の背景

MeV 級エネルギーの C_{60} イオンビームは、高密度エネルギー付与を特徴とし、阻止能、二次イオン・二次電子放出、照射損傷など様々な物理現象で単原子イオンの照射とは異なる照射効果が発現するため、新機能性材料開発や高感度分析技術分野への貢献が期待されている。質量数が 720 と大きな C_{60} イオンを MeV エネルギーに加速するためには静電加速器が有効であり、現在国内外においてタンデム加速器が用いられている。 C_{60} イオンは、例えば 3MV タンデム加速器で加速可能な 12MeV 程度のエネルギーでも、1GeV の金イオンよりも高いエネルギーを単位長さ辺りに付与することができる。しかし、タンデム加速器で得られるビーム強度は 1pA 以下と少なく、これが照射研究を進める上での大きな妨げとなっていた。ビーム強度増大のためには、特にイオン源から引き出される C_{60} 負イオン強度の高強度化が必要不可欠な要素であった。

これまで、 C_{60} 負イオン生成を目的としたイオン源の開発には、セシウムスパッタ型負イオン源が用いられてきたが、セシウムでスパッタされる固体試料表面の C_{60} がスパッタの衝撃で解離していくため、負イオン強度は時間と共に大きく減少し、負イオン強度は平均 50 pA 程度と非常に低いことが課題であった [1]。

一方、 C_{60} は電子親和力が約 2.65eV と大きな値を持つことに加え、電子付着断面積は 0.2-12eV と広範囲にわたる [2]。そのため、低エネルギーの電子を C_{60} に付着させることで負イオンが生成する。この方法では原理的に C_{60} の解離が起こらず、高強度の C_{60} 負イオンが生成できるとの着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、負イオン源で生成する C_{60} 負イオン強度の高強度化のため、従来のセシウムスパッタ型負イオン源に代わり、新たに電子付着方式の負イオン源を開発する。本方式による高強度の C_{60} 負イオンの生成を実証することを目的とする。

3. 研究の方法

昇華させた C_{60} に低エネルギーの電子を付着させるため、図 1 に示すイオン源を製作した。本イオン源は、チェンバー、試料昇華用オープン、フィラメント及び引き出し電極で構成される。イオン生成チェンバーはモリブデン製で、内径 $\phi 30\text{mm} \times 30\text{mm}$ であり、 $\phi 5\text{mm}$ の引き出しスリットを有する。電子源には、フィラメントとして内径 5mm 巻のコイル状の 1% トリアタングステン線をチェンバー内部に設置した。フィラメントの加熱により放出される熱電子を引き出し軸の中心方向に集中させるため、コイル状フィラメントの中心に、チェンバーと同電位の $\phi 1\text{mm}$ のタングステン製線を設置し、フィラメントとチェンバー間にバイアス電圧を印加した。フィラメントからの熱電子放出量に相当するバイアス電流（フィラメントとチェンバー間に流れる電流）はバイアス電源のメーターで測定した。一例として、フィラメント電力及びバイアス電圧がそれぞれ 200W 及び 45V のとき、15mA のバイアス電流が得られた。引き出し電極は内径 $\phi 6\text{mm}$ であり、引き出し電極とチェンバー間の距離は 5mm とした。引き出し電極と反対側に、カーボン製のろつぼ、窒化ホウ素製の絶縁物及びタンタル線ヒーターで構成した試料昇華用オープンを設置し、オープン温度はカーボン製のろつぼ底面の温度を熱電対で測定した。

本イオン源の性能を評価するために、質量分析電磁石を備えたオフラインのテストベンチにイオン源を設置して負イオン生成試験を行った。市販の純度 99.5% の C_{60} 粉末をオープンで加熱し、イオン源及び各電源を -3kV の電位に設置し、引出電極及びビームラインを設置することで、イオン源で生成する負イオンを引き出した。負イオンビームは引出電極下流のアイントゥエルレンズで集束させ、軌道半径 300mm の 90 度分析電磁石で質量分析した。イオンビームの電流は分析電磁石の集束点に設置したファラデーカップにより測定した。イオン源のベース真空度は 10^{-6} Pa 台である。

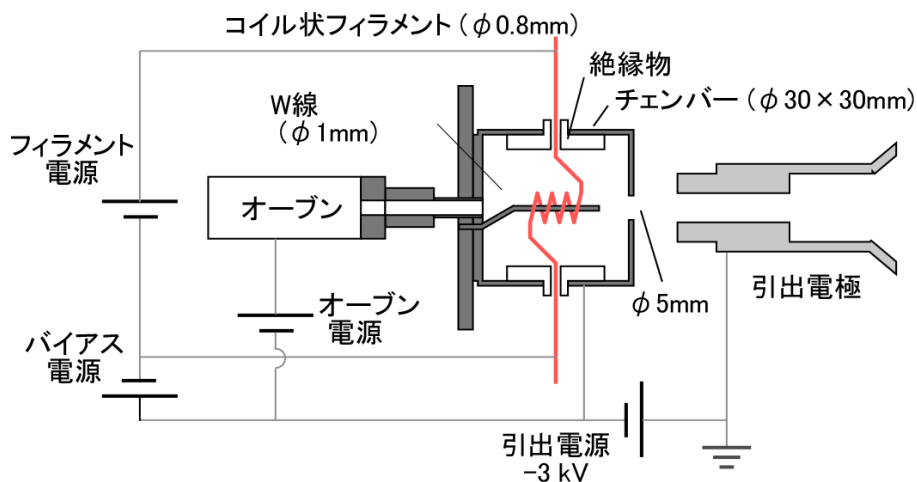


図1 製作した負イオン源の構造図

4. 研究成果

バイアス電圧を0–200Vの範囲で変化させ、生成した C_{60}^- イオン電流を測定した。フィラメント電力200W、オープン温度600°Cのときのバイアス電圧に対する C_{60}^- イオン電流及びバイアス電流の関係を図2に示す。本イオン源では、バイアス電圧を印加しない場合(0V)でも70nAのビーム強度が得られた。また、バイアス電圧が20V以上でバイアス電流が急激に増加し、それに伴って C_{60}^- イオン強度も増加することが分かった。 C_{60} の電子付着断面積は12eV以上では小さいが、反対にイオン化断面積は10eV以上で大きくなる[3]。よってバイアス電流の増加は C_{60} の電離・放電によるものだと考えられる。したがって、 C_{60}^- イオン電流の増加は C_{60} の電離に伴い放出される低エネルギー二次電子($C_{60} + e^- \rightarrow C_{60}^+ + e^- + e^-$ (低エネルギー))が中性の C_{60} に付着し、負イオンが生成していると考えている。実際に引出電圧の極性を反転し、+3kVでイオンを引き出した結果、負イオンと同強度の正イオンが得られることが分かった。バイアス電圧が45Vのとき、 C_{60}^- イオン電流が最大の710nAとなり、それ以上バイアス電圧を上げると、低エネルギーの二次電子電流量が減少するため、負イオン電流が減少した。

オープン温度600°Cの時のフラーレン試料昇華量を1.75 $\mu\text{g/s}$ と仮定すると[4]、引き出し・輸送効率を含むフラーレン昇華量に対する負イオンの生成効率は約0.3%であった。

次に、生成した負イオンのマスペクトルを図3に示す。これまで報告されている正イオンの生成と同じように[5]、 C_{60}^- に加えて、 C_{60-2n} のフラグメント負イオン及び構成原子数が20個程度までの炭素クラスター負イオンが観測された。目的とする C_{60}^- イオンは生成する負イオン全体の約90%と高い割合であることを確認した。

続いて、 C_{60}^- イオン電流の時間変化を図4に示す。イオン源立ち上げの後、一定のフィラメント電力及びオープン温度ではイオン電流は5時間で半分程度と、時間と共に減少していった。10時間イオン生成を行った後のフィラメントを観察した結果、フィラメントの径が2倍程度に増加していることが分かった。したがって、負イオンビーム電流量の減少は、フィラメントへの付着物又はフィラメント表面の変質により、熱電子電流が減少したためだと考えられる。そこで、負イオンビーム強度を維持するため、オープン温度及びフィラメント電力を時間と共に徐々に増加させることにより、600nAの C_{60}^- ビーム電流を10時間以上維持することに成功した。

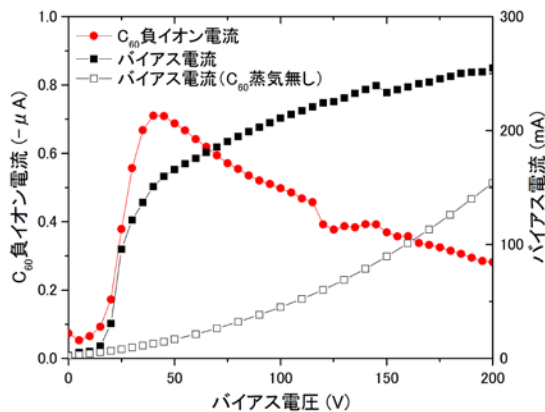


図2 C_{60}^- 負イオン電流のバイアス電圧依存性

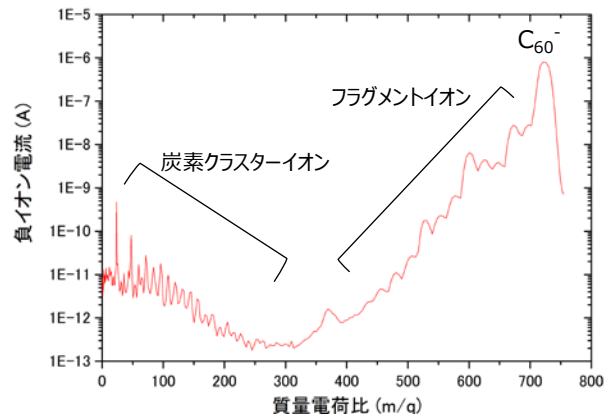


図3 生成する負イオンのマスペクトル

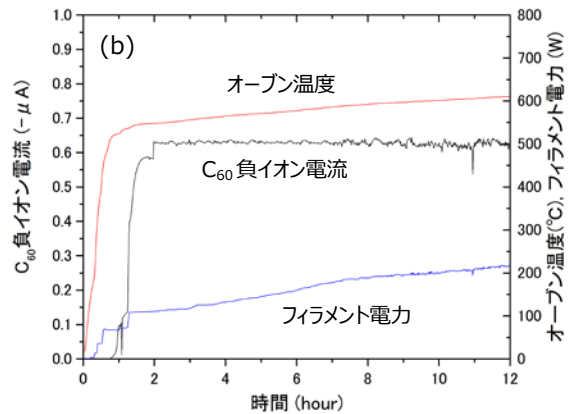
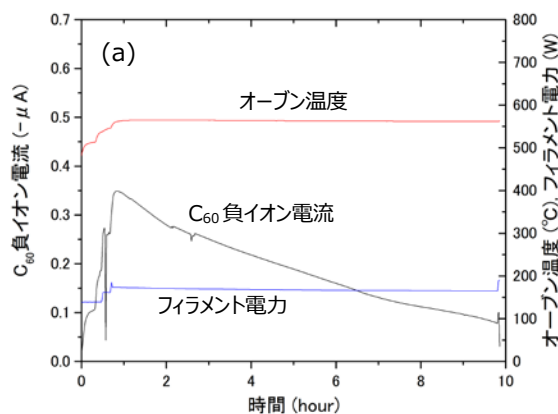


図4 C_{60}^- 負イオン電流の時間変化

オープン温度及びフィラメント電力(a)一定(b)徐々に増加

<参考文献>

- [1] B. Waast, S. Della-Negra, and A. Lafoux, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 382, 348 (1996).
- [2] T. Jaffke, E. Illenberger, M. Lezius, S. Matejcik, D. Smith, and T.D. Mark, Chem. Phys. Lett. 226, 213 (1994)
- [3] S. Matt, B. Dunser, M. Lezius, H. Deutsch, K. Becker, A. Stamatovic, P. Scheier, and T. D. Mark, J. Chem. Phys. 105, 1880 (1996).
- [4] J. Abrefah, D. R. Olander, M. Balooch, and W. J. Siekhaus, Appl. Phys. Lett. 60, 1313 (1992).
- [5] K. Yamada, Y. Saitoh, and W. Yokota, Rev. Sci. Instrum. 85, 02A920 (2014).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- ① K. Yamada, A. Chiba, Y. Hirano, Y. Saitoh, Development of an Electron-Attachment-Type Negative Fullerene Ion Source, AIP Conference Proceedings, 査読有, 2011 (2018) 050020, doi: 10.1063/1.5053318

〔学会発表〕(計 5 件)

- ① 山田圭介、千葉敦也、平野貴美、鳴海一雅、齋藤勇一、MeV 級 C₆₀ イオンビームの高強度化に向けた負イオン源の開発、第 17 回放射線プロセスシンポジウム、(2018)
- ② 山田圭介、千葉敦也、平野貴美、齋藤勇一、電子付着型フラーレン負イオン源の開発、QST サイエンスフェスタ 2017、(2017)
- ③ 山田圭介、千葉敦也、平野貴美、齋藤勇一、Development of an Electron-Attachment-Type Negative Fullerene Ion Source、17th International Conference on Ion Source、(2017)
- ④ 山田圭介、量研高崎における C₆₀ 負イオン源の開発状況、かけはし:TIA 連携プログラム探索推進事業シンポジウム、(2017)
- ⑤ 山田圭介、千葉敦也、横山彰人、齋藤勇一、鳴海一雅、フラーレン負イオン源の開発、第 13 回日本加速器学会年会、(2016)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。