

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 12 日現在

機関番号：82110  
 研究種目：基盤研究(C)  
 研究期間：2010～2012  
 課題番号：22560833  
 研究課題名（和文）クーロン爆発イメージングと二次電子測定による高速クラスターイオンの近接効果の解明  
 研究課題名（英文）Investigation of vicinage effect of fast cluster ions by a Coulomb-explosion imaging and secondary-electron measurement  
 研究代表者  
 鳴海 一雅（NARUMI KAZUMASA）  
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・放射線高度利用施設部・研究主幹  
 研究者番号：90354927

研究成果の概要（和文）：複数の原子が結合しイオン化したクラスターイオンが高速領域（ボーア速度以上）で固体と衝突する際に誘起される二次電子放出には、近接効果と呼ばれる未解明の物理過程がある。本研究では、この効果に、励起電子の生成過程に由来するものと励起電子の固体表面までの輸送過程に由来するものがあること、さらにどちらの寄与が支配的であるかは分離したイオン間の固体中での距離に依存することを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Vicinage effect on secondary-electron (SE) emissions from a solid induced by bombardment with molecular/cluster ions having faster velocity than the Bohr velocity is one of the open questions in the physics of ion-solid interaction. In this study, we demonstrate that the vicinage effect on SE emissions consists of two contributions: one originates from the production process of scattered electrons, the other originates from the transport process of the scattered electrons, and the dominant contribution depends on an internuclear distance between the dissociated ions.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：高速クラスターイオン、固体内原子衝突、二次電子放出、近接効果

## 1. 研究開始当初の背景

高速荷電粒子（イオン、電子等）を固体に照射した際に起こる二次電子放出は、放射線と物質との相互作用のうち普遍的な現象の一つで、荷電粒子検出器や走査型電子顕微鏡を始め種々の表面分析において応用上も重要な役割を担う興味ある現象である。この現象

は電子生成から放出までを①入射粒子による固体中での励起電子の生成（生成過程）、②励起電子の表面への輸送（輸送過程）、③励起電子の表面障壁の透過（透過過程）の3つの過程に分離した3ステップモデルで概ね理解されている。さらに、励起される電子の数は入射粒子に対する電子的阻止能  $S_e$ （荷電粒

子が固体中を単位距離進む間に固体内電子の励起や電離に費やされるエネルギー)に比例、即ち $\gamma = \Lambda S_0$  (式 1)と仮定されている。ここで、 $\gamma$ は二次電子収量(1個の入射粒子が放出させる平均の電子数)を表し、 $\Lambda$ は物質パラメータと呼ばれ標的のみに依存する比例係数である。従って、3ステップモデルにおいては、二次電子収量が生成過程のみで決定されると考えられている。

高速の分子イオン・クラスターイオンを入射させた場合、近接効果と呼ばれる現象が起きることが報告されている(以下、簡単のため2原子以上で構成されるイオンを全てクラスターイオンと呼ぶ)。例えば数百keV/u程度までの $H_n^+$ イオンを炭素薄膜に入射させ、イオンの進行方向と逆方向(薄膜後方)に薄膜から放出された二次電子収量 $\gamma_n$ と、同じ速度の $H^+$ イオンを入射させた場合に得られる同様の二次電子収量 $\gamma_1$ との比 $R_n = \gamma_n/\gamma_1$ は $R_n < 1$ となり(近接効果)、クラスターの構成原子数 $n$ の増大とともに構成原子1個当たりの放出電子数が減少する。

この二次電子放出に対する近接効果は、(式 1)の仮定に基づき、さらに電子的阻止能の近接効果を考慮しても、それだけでは定量的にも定性的にも説明できない。従って、二次電子放出の近接効果は3ステップモデルの生成過程だけでは説明できず、輸送過程・透過過程の寄与もある可能性が指摘されてきた。

こうした研究を背景に、研究代表者と連携研究者のグループは、固体中ではクラスターが解離し、その解離イオン同士が互いの電荷によるクーロン力でその核間距離を広げていく(クーロン爆発)とやがて近接効果が観測されなくなるという実験結果に着目し、薄膜標的の膜厚を大きく変えることによって薄膜出口付近の核間距離を変化させ、二次電子収量の近接効果が消失する核間距離を求めた。その結果、62.5 keV/uの $C_2^+$ イオンを入射させた場合に近接効果が消失する核間距離(1~2 nm)を初めて決定した(Y. Takahashi, K. Narumi *et al.*, EPL 88 (2009) 63001.)。この値は電子的阻止能の近接効果が消失する核間距離より約1桁大きく、二次電子放出においては近接効果に寄与する相互作用が輸送・透過過程にも存在することが明らかとなった。また、この値はそのような機構を支配する相互作用を特徴づける距離に相当すると考えられる。

さて、励起電子の輸送過程に影響を与える物理モデルの一つにトラックポテンシャルモデルがある。入射イオンが固体中の電子を励起した後に残された正電荷は、イオンの軌跡に沿って正の静電ポテンシャルを誘起する。このポテンシャルによって励起電子が再捕獲されるモデルである。クラスターイオン

の場合には、解離イオンによって発生した励起電子が、他の解離イオンが誘起するトラックポテンシャルに捕獲されることが予想され、近接効果の要因の一つと考えられていた。

一方、2009年の筑波大グループの報告は、トラックポテンシャルモデルの可能性と近接効果に対する透過過程の寄与の可能性を否定し、ウェイクポテンシャルによる励起電子の散乱が大きな要因であると結論づけた。ウェイクポテンシャルとは、イオンの電荷に対する伝導電子の動的分極によって誘起される振動状のポテンシャルである。このモデルでは、励起電子が別の解離イオンが誘起するウェイクポテンシャルによって散乱されるために、真空中に放出される励起電子数が減少すると考えられている。しかし、我々が得た近接効果が消失する核間距離は、励起電子にこれらのポテンシャルの影響が及ぶ時空間スケールよりも大きく、トラックポテンシャルモデルを否定するだけでなくウェイクポテンシャルモデルについても否定的な結果を示唆した。

ここまでの結果から、二次電子放出の近接効果では、電子的阻止能、即ち励起電子の生成過程の近接効果だけでなく、輸送過程での近接効果が大きな要因になっていることが明らかになってきた。しかし、後者がウェイクポテンシャルによるものなのか、ウェイクポテンシャルの既存の理論の修正も含む他の要因にもよるものなのかについては、研究開始当初は結論が出ていなかった。

## 2. 研究の目的

本研究では、二次電子放出に対する近接効果の起源を解明することを目的とする。背景において既述したように、特にクラスターが解離した後のイオンと固体内に励起された電子との相互作用を特徴づける物理量を実験的に明らかにし、特に励起された電子が固体表面へ輸送される過程の物理モデルを構築する。

## 3. 研究の方法

(1) 固体内で生成された励起電子の表面への輸送過程における近接効果は、入射クラスターイオンが解離したイオンと励起電子との相互作用によって決定されると推測される。即ち、図1に示すように、入射イオンの進行方向と解離イオン間を結ぶ直線がなす角(以下、配向角 $\phi$ と呼ぶ)が異なれば、輸送過程における近接効果が異なることが予想される。そこで、薄膜を透過する高速クラスターイオンが誘起する二次電子数と薄膜透過後の解離イオンのクーロン爆発パターンを同時計測できるシステム(図2参照)を用いて、250 keV/uの $C_2^+$ イオンを非晶質炭素薄膜に入射させた際に薄膜の前後に放出される

二次電子数と、薄膜透過後の解離イオンの配向角 $\phi$ の相関を、膜厚をパラメータとして測定した。

(2) 研究成果で後述するように、二次電子の生成過程における近接効果と輸送過程における近接効果の相対的な寄与は、ターゲットとなる非晶質炭素薄膜の厚さ、即ち薄膜出射時の解離イオンの核間距離に依存することを示唆する実験結果が得られた。そこで、生成過程と輸送過程の相対的寄与の速度による変化を明らかにするために、特に近接効果が負( $R < 1$ )から正( $R > 1$ )へ転じると期待される速度領域において(62.5-250 keV/u)、近接効果の膜厚依存性(厚さ 2-100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )を詳細に調べた。特に膜中での解離イオンの大角散乱等による影響を避けて、近接効果を正確に評価するために、薄膜を透過した解離イオンの数を半導体検出器により同時に測定した。さらに、近接効果に関わる相互作用の強度の情報を引き出すため、入射イオンとしてZ番号の異なる $\text{H}_2^+$ と $\text{C}_2^+$ を用いた。

#### 4. 研究成果

(1) 250 keV/u の $\text{C}_2^+$ イオンを厚さ 4、5、17  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  の非晶質炭素薄膜に照射し、ビームの進行方向(薄膜前方)及び反対方向(薄膜後方)に放出された二次電子数と薄膜透過後の解離イオンのクーロン爆発パターンを同時計測した結果を図3に示す。この結果、薄膜前方に放出される二次電子数について、厚さ 4  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  の薄膜においては $\phi$ が $90^\circ$ に近い場合よりも $0^\circ$ に近い場合の方が多く、より厚い薄膜については $\phi$ による明らかな差が

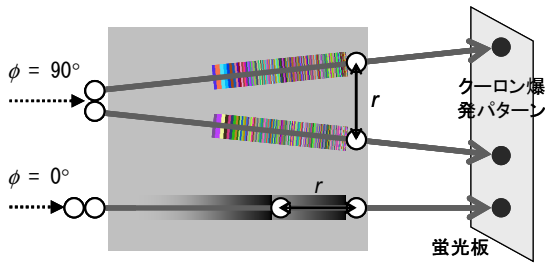


図1  $\phi$ とクーロン爆発パターンの関係(模式図)。

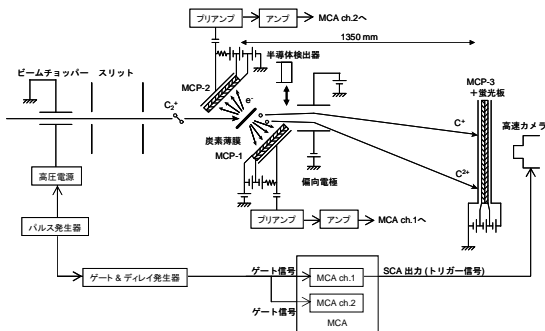


図2 実験装置の概要図。

ないことがわかった。そこで、 $\phi$ による近接効果の違い、また核間距離に対する依存性を示すために、二次電子収量比 $R_2 = \gamma_2/2\gamma_1$ で近接効果を評価し、薄膜出射時の核間距離の関数として図4にまとめた。ここで、解離イオンの核間距離は薄膜中での解離イオン間のクーロン爆発、エネルギー損失、平均電荷を考慮した軌道計算より求めた。また、 $\phi$ による違いが大きい $\phi = 0-30^\circ$  と $\phi = 60-90^\circ$  の範

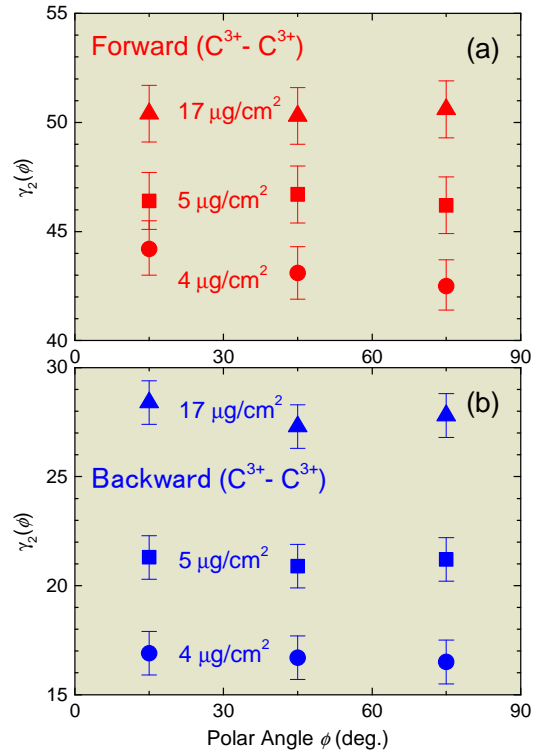


図3 250 keV/u  $\text{C}_2^+$ イオンを非晶質炭素薄膜(厚さ 4、5、17  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )に照射した場合の二次電子収量 $\gamma_2(\phi)$ の配向角依存性。(a) 薄膜の前方に放出された二次電子。(b) 薄膜の後方に放出された二次電子。薄膜を出射した $\text{C}^{3+}$ - $\text{C}^{3+}$ の組み合わせについて、配向角 $\phi$ が $0-30^\circ$ 、 $30-60^\circ$ 、 $60-90^\circ$ の範囲でまとめた。

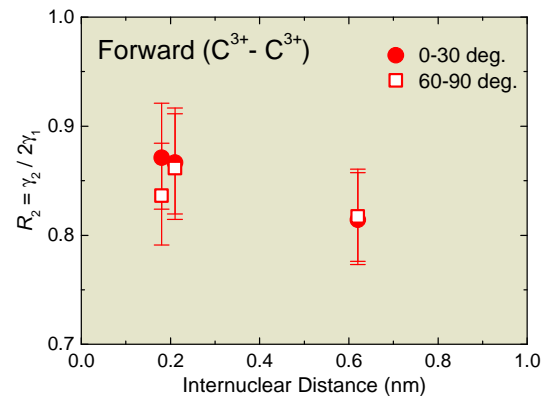


図4 薄膜前方に放出された二次電子収量の比 $R_2 = \gamma_2/2\gamma_1$ の核間距離依存性。解離イオンの核間距離は薄膜出射時の値を軌道計算によって評価した。 $\phi = 0-30^\circ$  と $\phi = 60-90^\circ$ の結果を示す。

囲でまとめた結果のみを示した。この測定で用いた3種類の膜厚に対していずれも  $R_2 < 1$  となる近接効果が観測された。注目すべき点は、 $\phi$ による近接効果の違いが1 nmよりも小さな核間距離で観測されなくなることである。二次電子の生成過程に密接に関わるエネルギー損失に対する近接効果は、1 nm程度の核間距離で消失することが知られていることから、 $\phi$ による二次電子放出数の違いは励起電子の生成過程によるものと結論づけられる。さらに、膜が厚くなると $\phi$ 依存性が認められないことから、近接効果に対する二次電子の生成過程と輸送過程の相対的寄与が薄膜の厚さ、即ち薄膜射出時の解離イオンの核間距離に依存することが示唆された。二次電子放出数と $\phi$ との関係を測定した同様の報告はあるが、解離イオンの核間距離との関連を明示したのは本研究が初めてである。

(2) クーロン爆発パターンから配向角 $\phi$ を決定する精度を上げるために、250 keV/u  $C_2^+$ イオンを非晶質炭素薄膜に入射させた際の透過解離イオンの荷電状態と角度分布の関係を軌道計算のシミュレーションの結果と併せて詳細に解析した。この結果、荷電状態と角度分布は入射  $C_2^+$ イオンの振動状態を反映

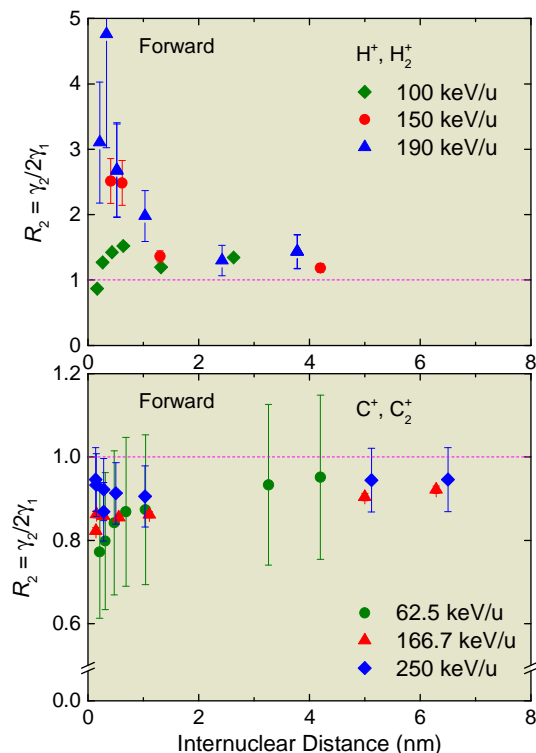


図5 100、150、190 keV/u  $H^+$ 及び $H_2^+$ 、62.5、166.7、250 keV/u  $C^+$ 及び $C_2^+$ を非晶質炭素薄膜に照射した際に、薄膜前方に放出された二次電子収量の比  $R_2 = \gamma_2/2\gamma_1$  を、薄膜射出時の解離イオンの核間距離の関数としてプロットした結果。 $R_2 = 1$ の時、近接効果は観測されない。

していること、特に薄膜に入射し解離した時の核間距離によって解離イオンの平均電荷が決まることを明らかにした。さらにこれらの情報から入射  $C_2^+$ イオンの振動状態の確率分布を明らかにした。

(3) 二次電子の生成過程における近接効果と輸送過程における近接効果の相対的な寄与の速度による変化を詳細に調べた。100-190 keV/u  $H_2^+$ イオン及び62.5-250 keV/u  $C_2^+$ イオンによって非晶質炭素薄膜から放出される二次電子の収量を、膜厚(2-100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )の関数として測定した。近接効果を二次電子収量の比  $R_2 = \gamma_2/2\gamma_1$  で評価し、薄膜射出時の核間距離の関数としてまとめたものが図5である。薄膜射出時の解離イオンの核間距離は、クーロン爆発を考慮した薄膜中での軌道計算によって評価した。図より明らかなように、 $H_2^+$ イオンについては二次電子放出の増大効果( $R_2 > 1$ )が、 $C_2^+$ イオンについては抑制効果( $R_2 < 1$ )が、それぞれ観測された。また、核間距離約1 nmを境に、それより小さい場合には $R_2$ が核間距離に依存し、それより大きい場合には $R_2$ がほぼ一定になることもわかった。二次電子の生成過程に密接に関わるエネルギー損失に対する近接効果が、1 nm程度の核間距離で消失することから、図5に示した結果は図6に示すような定性的なモデル、即ち二次電子放出に対する近接効果は

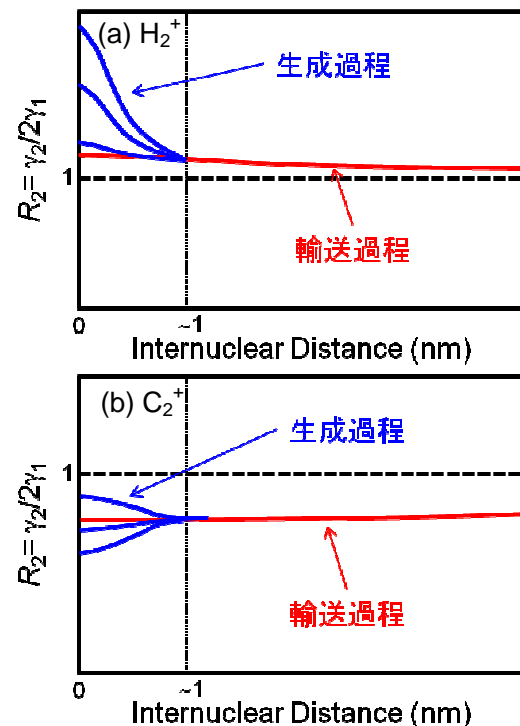


図6 図5で示す二次電子放出に対する近接効果の核間距離依存性を模式的に示す図。赤の実線は輸送過程における近接効果の寄与、青の実線は生成過程における近接効果の寄与を表す。

生成過程における近接効果と輸送過程における近接効果の和であるとするモデルで説明できる。実際に、これまで報告されているエネルギー損失に対する近接効果の速度依存性と類似性( $H_2^+$ においては  $R_n = \Delta E_n/n\Delta E_n > 1$  で速度とともに  $R_n$  が増大。 $C_2^+$  においては速度とともに  $R_n < 1$  から  $R_n > 1$  へ変化。ここで  $\Delta E$  はエネルギー損失を表す。)から、核間距離が約 1 nm より小さい場合には、二次電子の生成(即ち、入射イオンのエネルギー損失)過程に対する近接効果が優勢であること、また、核間距離が約 1 nm より大きい場合には輸送過程での近接効果が支配的であると結論することができる。

一方で、この結論に基づくと輸送過程での近接効果は  $H_2^+$  の場合には正( $R_2 > 1$ )に、 $C_2^+$  の場合には負( $R_2 < 1$ )になった。この結果は、輸送過程における近接効果の有力モデルであるウェイクポテンシャルモデルでも説明できない。従って、近接効果の起源として新たな物理過程を示唆している可能性も考えられる。しかし、この結果の解釈を含む二次電子放出に対する近接効果の起源の解明には、実験結果のさらなる検討が必要であり、今後も引き続き研究を継続する予定である。

## 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 1 件)

- ① A. Chiba, Y. Saitoh, K. Narumi, Y. Takahashi, K. Yamada, T. Kaneko, Measurement of divergence angles classified by charge-state combination of  $C_2^+$  constituents passing through a thin carbon foil, Nucl. Instrum. Methods B 269 (2011) 824-828. 査読有り  
doi:10.1016/j.nimb.2010.12.002

[学会発表] (計 9 件)

- ① 鳴海一雅、高橋康之、千葉敦也、山田圭介、的場史朗、斎藤勇一、石川法人、須貝宏行、前田佳均, 62.5-250 keV/u  $H_2^+$  と  $C_2^+$  イオン衝撃により炭素薄膜から放出される二次電子収量の膜厚依存性、日本物理学会第 68 回年次大会、2013 年 3 月 25 日-28 日、広島大学
- ② K. Narumi, Y. Takahashi, A. Chiba, Y. Saitoh, K. Yamada, N. Ishikawa, H. Sugai, Y. Maeda, Thickness dependence of secondary-electron yield from carbon foils bombarded with 62.5-300-keV/u  $H_2^+$  and  $C_2^+$  ions, 8th International Symposium on Swift Heavy Ions in Matter, October 24-27, 2012, Kyoto, Japan.

- ③ A. Chiba, Y. Saitoh, K. Narumi, K. Yamada, and T. Kaneko, Quantitative evaluation of charge-reduction effect in cluster constituent ions passing through a foil, 25th International Conference of Atomic Collisions in Solids, October 21-25, 2012, Kyoto, Japan.
- ④ K. Narumi, Y. Takahashi, A. Chiba, Y. Saitoh, K. Yamada, N. Ishikawa, H. Sugai, Y. Maeda, Vicinage effect on secondary-electron emission from carbon foils penetrated by swift  $H_2^+$  and  $C_2^+$  ions, 19th International Workshop on Inelastic Ion-Surface Collisions, September 16-21, 2012, Frauenchiemsee, Germany.
- ⑤ K. Narumi, Y. Takahashi, A. Chiba, Y. Saitoh, K. Yamada, N. Ishikawa, H. Sugai, Y. Maeda, Vicinage effect on secondary-electron yield from amorphous carbon foils induced by swift  $H_2^+$  and  $C_2^+$  ions, The 18th International Conference on Ion Beam Modifications of Materials, September 2-7, 2012, Qingdao, China.
- ⑥ K. Narumi, Y. Takahashi, A. Chiba, Y. Saitoh, K. Yamada, N. Ishikawa, H. Sugai, Y. Maeda, Vicinage effect on secondary-electron emission from amorphous carbon foils induced by swift  $C_2^+$  ions, E-MRS2011, May 9-13, 2011, Nice, France.
- ⑦ 千葉敦也、斎藤勇一、鳴海一雅、山田圭介、高橋康之、金子敏明、薄膜を透過した 2 原子分子構成イオンの電荷と初期核間距離との相関、日本物理学会秋季大会、2010 年 9 月 23-26 日、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス
- ⑧ Y. Takahashi, K. Narumi, A. Chiba, Y. Saitoh, K. Yamada, N. Ishikawa, H. Sugai, S. Sakai, Y. Maeda, Molecular-axis-orientation dependence of vicinage effect on secondary-electron emission from thin carbon foils bombarded with 250-keV/u  $C_2^+$  ions, 24th International Conference of Atomic Collisions in Solids, July 18-23, 2010, Krakow, Poland.
- ⑨ A. Chiba, Y. Saitoh, K. Narumi, Y. Takahashi, K. Yamada, T. Kaneko, Measurement of divergence angles classified by charge-state combination of  $C_2^+$  constituents passing through a thin carbon foil, 24th International Conference of Atomic Collisions in Solids, July 18-23, 2010, Krakow,

Poland.

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

鳴海 一雅 (NARUMI KAZUMASA)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・放  
射線高度利用施設部・研究主幹  
研究者番号：90354927

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

齋藤 勇一 (SAITOH YUICHI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・放  
射線高度利用施設部・研究主幹  
研究者番号：40360424  
千葉 敦也 (CHIBA ATSUYA)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・放  
射線高度利用施設部・研究副主幹  
研究者番号：40370431  
高橋 康之 (TAKAHASHI YASUYUKI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・先  
端基礎研究センター・博士研究員  
研究者番号：00511495

(H22.8：退職)