

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 19 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790084

研究課題名(和文)多孔性結晶薄膜を用いた分子イオンの配向制御に関する研究

研究課題名(英文)The study on an orientational control of a molecule ion with a porous crystal film

研究代表者

的場 史朗(Matoba, Shiro)

独立行政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・博士
研究員

研究者番号：80535782

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)：多孔質薄膜を用いた分子イオンビームの分子軸配向制御を目的として、ナノメートルサイズのストレート孔内壁と透過分子イオンの間に生じる相互作用の解明を行う。

(1)クーロン爆発イメージング法による分子イオンの配向角度分布測定装置の高検出効率化を行った。
(2)TS-1ゼオライト結晶自立薄膜及びイオン穿孔カプトン薄膜を用いてイオン透過実験を行った。分子イオン透過のためにゼオライト結晶薄膜に対して高い結晶性が要求されることがわかった。穿孔カプトン薄膜を透過した分子イオンについては薄膜内壁表面に生じたウエイクポテンシャルによる相互作用を示唆する結果が得られた。

研究成果の概要(英文)：The interaction between a penetration molecular ion and an inner wall of a straight capillary with a nanometer diameter has been studied for the purpose of an orientational control of a molecular ion with a porous thin film. (1) An efficiency of a Coulomb explosion imaging system for measurement of a distribution of a molecular axis of a molecular ion was increased. (2) Ion transmission experiments have been performed with a self-supporting TS-1 zeolite crystal film and an ion perforation kapton film. It was found that a high crystalline was requested to a zeolite crystal film for transmitting a molecular ion. The result with the ion perforation kapton film suggests an existence of the wake potential between a molecular ion and the surface of the inner wall of the ion perforation kapton film.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：量子ビーム 放射線 配向分子イオン 分子イオン 加速器

1. 研究開始当初の背景

分子イオンは一般に非等方的な量子系であり、分子イオンの関与する物理化学現象においては分子軸の空間的な配向効果が常に関心の的となってきた。例えば、分子イオンと中性分子との相互作用では様々な計算機シミュレーションにおいて特定の角度に起因した強い共鳴的な物理現象が現れることが示唆されているが、実験的には衝突断面積などの物理量は分子軸の角度で平均化された情報しか得られていない。この直接的解明の為に分子の配向制御技術の重要性はますます増している。中性分子については、強電場を用いた二原子分子の配向制御が実現される[B. Friedrich and D. R. Herschbach, *Nature* **353** (1991) 412.]等、多くの研究が行われている。しかしながら、分子イオンについては全く成功例がないのが現状であった。

過去に Susuki らは、MeV エネルギーの HeH^+ を SnTe 結晶表面に数 mrad のスレスレ角で入射させた際に生じた解離片の散乱角度分布及びエネルギー分布を測定した[Y. Susuki *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. B* **48** (1990) 347.]. その結果、電場が存在しないと仮定したクーロン解離の場合と比較して、解離 H^+ のエネルギー分布は一致するが、散乱角度分布は狭いことが観測されている。これは、クーロン解離後に表面ポテンシャルによって解離 H^+ と解離 He^+ の核間ベクトルの方向がビーム軸と平行に配向したと結論づけられている。一方、クーロン解離前に配向したと仮定すれば、表面近傍を通過する分子イオンによって作られる表面のウエイクポテンシャルによって分子軸がビーム軸と平行に配向したと考えることもできる。しかしながら、高速分子イオンは表面で小角散乱する際にほぼ全てが解離してしまうため、この現象の直接的な観測は非常に困難である。

本研究では、表面の代わりに多孔質薄膜を用いることでこの問題を解決する。表面近傍を通過する分子イオンの解離確率は、分子イオンと表面の距離に対して指数関数的に減少する。一方、表面ウエイクポテンシャルは表面との距離のべき乗で減少し、比較的遠方まで相互作用する[Y. Susuki, "Studies on interactions of fast molecular ions with single crystal surfaces", Doctoral Thesis, Kyoto univ., 1996.]. したがって、直径がナノメートルオーダーのストレートな細孔を持つ多孔質薄膜を解離せずに透過した分子イオンは、細孔壁からのウエイクポテンシャルを経験していると考えられ、その分子軸の配向は同一方向に揃っていると期待される。以上から、多孔質薄膜を用いることで分子イオン配向制御のための基礎技術となりうると考えた。

多孔質薄膜を透過した分子イオンのビーム軸に対する分子軸角度の測定方法として、

クーロン爆発イメージング法が用いられる。この手法では、分子イオンを炭素薄膜に入射させ、クーロン解離した解離片が位置敏感型検出器に到達した位置を同時計測することで解離直前のビーム軸に対する分子軸の角度が得られる。位置敏感型検出器として用いられるマイクロチャンネルプレート(MCP)の最大検出効率は、表面積に対する全細孔の開口面積比(開口率)と同等であることが知られており、チャンネルに入射した粒子のみが検出されると考えられている。市販の一般的な MCP では開口率は 50%-60%であり、二粒子以上の同時検出の場合、検出効率の低下が顕著となる。分子軸の角度分布を精度よく測定するためには、MCP の検出効率を向上させる必要があった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、多孔質薄膜を用いた分子イオン配向制御実現を見据え、(1)MCP の検出効率を向上させて高検出効率クーロン爆発イメージング法を構築し、(2)多孔質薄膜内壁表面と透過分子イオンのウエイクポテンシャルによる相互作用の有無の検証を行い、透過した分子イオンのビーム軸に対する分子軸角度分布を調べることである。

3. 研究の方法

(1)研究代表者は、開口率を上げれば検出効率を増加させる事が出来ると考え、入射部にテーパ加工を施して実効的に開口率を 90% に上げた MCP(T-MCP)の製作にこれまで取り組んできた[S. Matoba *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** (2011) p112201]。本研究では、開口率を約 100%にした T-MCP を用いてイオン検出効率の測定を行った。一段目に T-MCP、二段目に通常の MCP(C-MCP)を用いたアセンブリの絶対検出効率を測定し、一、二段目ともに C-MCP を用いたアセンブリの検出効率と比較した。

(2)分子イオンが解離せずに透過できる多孔質薄膜の条件としては、自立薄膜であり、貫通孔の直進性・平行性がよく、細孔径が細いことが求められる。本研究では、上記の条件と合致する候補である TS-1 ゼオライト結晶自立薄膜(細孔径 0.6 nm、膜厚 1 μm)及びイオン穿孔カプトン薄膜(細孔径 120 nm、膜厚 12 μm)を用いてイオン透過実験を行った。

最初に、多孔質薄膜の細孔径の直進性・平行性を確認するために、ゼオライト薄膜及び穿孔カプトン薄膜に対して原子イオンビームを入射させ、透過粒子収量のビーム軸に対する薄膜の角度依存性を観測した。具体的には、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所イオン照射研究施設(TIARA)の 3MV シングルエンド加速器によって得られた 2 MeV の H^+ または He^+ を、ゴニオメータに設置された多

孔質薄膜に入射させ、下流の半導体検出器で透過粒子の収量を測定した。次に分子イオンを薄膜に入射させ、クーロン爆発イメージング法を用いて透過分子イオンの分子軸角度分布を測定した。概略図を図1に示す。TIARAの3MVタンデム加速器から得られた6 MeVの C_2^+ を、ゴニオメータに設置した多孔質薄膜に入射する。透過粒子の収量が最大となるようにビーム軸と薄膜との角度をゴニオメータで調節する。透過粒子は面密度 $2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜に入射され、クーロン解離する。解離片は下流の静電型デフレクターによって価数ごとに分離され、蛍光板付MCPを用いてevent-by-eventモードで検出する。MCP蛍光板からの発光をCMOSカメラによって観測し、位置情報から解離片のクーロン解離角度の分布を作成する。多孔質薄膜及び炭素薄膜を透過した粒子と炭素薄膜のみを透過した粒子について同様の実験を行い、ビーム軸に対する分子軸角度分布の違いを議論する。

4. 研究成果

(1)図2は Ar^{q+} ($q=1, 2, 3$)に対するT-MCP及びC-MCPの検出効率を入射イオンの運動エネルギーの関数で表している。T-MCPの検出効率は、測定したエネルギー領域ではC-MCPの検出効率を上回っている。検出効率は、低いエネルギー領域ではエネルギーの増加に伴い上昇した。これは二次電子放出率がエネルギーとともに上昇するためだと考えられる。一方、C-MCPは5 keV以上、T-MCPでは50 keV以上のエネルギーで検出効率はいずれも一定値を示し、最大検出効率は開口率に達している。以上から、開口率を約100%にしたMCPの最大検出効率は100%でありT-MCPを組み込むことでクーロン爆発イメージング法の高検出効率化が達成される見通しを得た。

(2)TS-1ゼオライト結晶自立薄膜に対して、3 MeVの H^+ ビームを入射させた実験では、透過収量のビーム軸に対する薄膜の角度依存性はみられず、細孔内を散乱せずに直進してきたイオンは観測されなかった。今回使用したゼオライト薄膜では細孔の直進性が低いため本実験に適さず、高い結晶性を持つ多孔質結晶自立薄膜の開発が今後の重要課題であることが明らかになった。

穿孔カプトン薄膜に対して、2 MeVの He^+ を照射して透過イオン電流量のビーム軸に対する薄膜の角度依存性を測定した。その結果から得られた細孔の平行度の分布は半値幅で 0.28 ± 0.08 度であり、孔径と膜厚のアスペクト比から求めた角度(0.57度)より小さく、今回照射した穿孔カプトン薄膜は本研究に適用可能であることがわかった。次に、透過分子イオンと穿孔カプトン膜内壁との相互作用の有無を検証する事を目的として、6 MeVの C_2^+ を照射し透過粒子の運動エネルギーの測定を行った。その結果、透過した分子イ

オンは細孔内部で解離しないがエネルギーの損失が観測された。ウエイクポテンシャルはイオンの進行方向に対して常に負の傾きを持つので、この結果は多孔質薄膜内壁に生じたウエイクポテンシャルによる相互作用を示唆している。次に、穿孔カプトン薄膜に6 MeVの C_2^+ イオンを入射させ、透過した C_2^+ イオン分子軸の配向分布についてクーロン爆発イメージング法を用いて調べた。図3は、

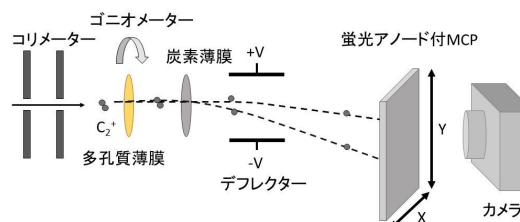


図1: クーロン爆発イメージング法の概略図。

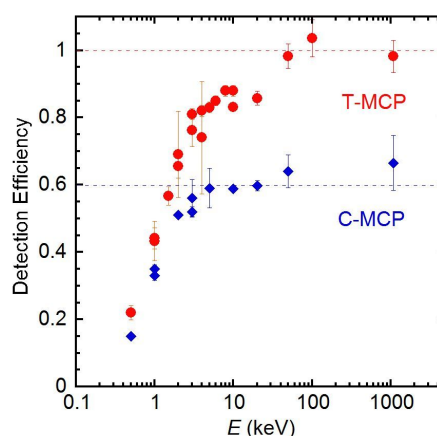


図2: Ar^{q+} ($q=1, 2, 3$)に対するT-及びC-MCPの検出効率の入射イオンの運動エネルギー依存性。点線はそれぞれのMCPの開口率を示している。

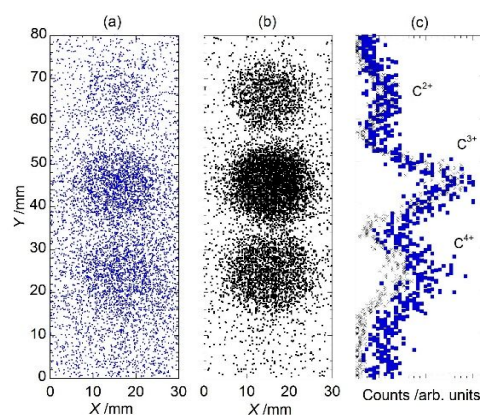


図3: (a)穿孔カプトン薄膜と炭素薄膜及び(b)炭素薄膜のみを透過した解離 C^{p+} ($p=2-4$)に対する二次元分布画像。(c)はカウント数をy軸へ射影した図。青は図(a)、黒は図(b)から求められたカウント数である。横軸は C^{3+} のカウント数のピーク高さで規格化されている。

MCP で 2 個同時に検出された透過粒子の二次元分布画像を示している。炭素膜のみのクーロン解離画像と比較すると、穿孔膜を透過した炭素イオンの方が平均電荷が高い。図 4 に C_3^+ に相当する信号のみを x 軸に射影したプロットを示す。ガウスフィットした分布の幅では、穿孔カプトン膜を透過した成分のほうが広がっていることが観測された。これは、透過した C_2^+ がビーム軸に対して垂直に配向したか、膜内で解離した炭素イオン対が測定に含まれていることを示唆している。正確な配向分布測定のために膜内での解離成分除去が必要であることが明らかになった。

以上から、多孔質薄膜を透過した分子イオンへのウエイクポテンシャルの影響が示唆される結果が得られており、より結晶性の高い多孔質薄膜結晶の開発、クーロン爆発イメージング法における多孔質薄膜内で解離した成分の除去という課題を解決し、T-MCP を組み込んだ高検出効率クーロン爆発イメージング法を用いて統計の高い測定を行うことで、多孔質薄膜を透過した分子イオンの分子軸角度分布測定が可能となる知見が得られた。

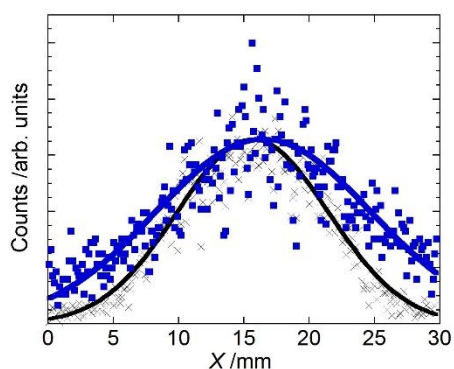


図 4: C_3^+ の信号のみの x 軸への射影図。縦軸はガウスフィッティング(青線:穿孔カプトン薄膜及び炭素薄膜を透過した粒子、黒線:炭素薄膜を透過した成分)のピークの高さで規格化されている。記号は図 3 と同じ。

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] S. Matoba, G. Ishikawa, S. Moriya, K. Takahashi, T. Koizumi, H. Shiromaru, "Mass dependence of the absolute detection efficiency of a tapered microchannel plate", Rev. Sci. Instrum., 査読有, 85, 2014, pp86105. DOI:10.1063/1.4891727.

[学会発表](計 6 件)

[1] 的場史朗, 千葉敦也, 山田圭介, 鳴海

一雅, 齋藤勇一, 加藤遼也, 上野和樹, 小泉哲夫, 城丸春夫, 高橋果林, "高開口率テーパ型マイクロチャンネルプレートのイオン検出効率測定", 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学早稲田キャンパス(東京都新宿区)

[2] 小泉哲夫, 加藤遼也, 上野和樹, 石川学, 的場史朗, 高橋果林, 城丸春夫, "高開口率テーパ型マイクロチャンネルプレート検出効率のイオン入射角依存性", 日本物理学会第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学早稲田キャンパス(東京都新宿区)

[3] S. Matoba, K. Narumi, Y. Saitoh, K. Yamada, A. Chiba, R. Kato, K. Ueno, K. Takahashi, T. Koizumi and H. Shiromaru, "Detection efficiencies of a tapered microchannel plate with high open-area-ratio", The 11th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, 6 Oct. 2014, Tohoku Univ. (Sendai Miyagi)

[4] 的場史朗, 守屋宗祐, 石川学, 高橋果林, 小泉哲夫, 城丸春夫, "高感度テーパ型マイクロチャンネルプレートの絶対検出効率測定", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 20 日, 青山学院大学相模原キャンパス(神奈川県相模原市)

[5] S. Matoba, S. Moriya, M. Ishikawa, K. Takahashi, T. Koizumi and H. Shiromaru, "Enhanced detection efficiency of a microchannel-plate detector with tapered channels for energetic ions", 日本原子力学会関東・甲越支部第 12 回若手研究者発表討論会, 2013 年 11 月 8 日, 東京工業大学大岡山キャンパス(東京都目黒区)

[6] 的場史朗, 鳴海一雅, 齋藤勇一, 千葉敦也, 山田圭介, 神谷富裕, 小泉哲夫, 高橋果林, 石川学, 城丸春夫, "テーパ型マイクロチャンネルプレートのイオン検出効率", 第二回イオン移動度研究会, 2013 年 5 月 18 日, 大阪府立大学中百舌鳥キャンパス(大阪府堺市)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

的場 史朗 (MATOBA SHIRO)

独立行政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 博士研究員

研究者番号: 80535782