



# 高速クラスターイオンビームによる物質との 相互作用および照射効果の解明

(共同研究)

Study on Interaction of Swift Cluster Ion Beam with Matter and Irradiation Effect  
(Joint Research)

(編) 斎藤 勇一 柴田 裕実

(Eds.) Yuichi SAITOH and Hiromi SHIBATA

高崎量子応用研究所  
放射線高度利用施設部

Department of Advanced Radiation Technology  
Takasaki Advanced Radiation Research Institute

July 2010

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2010

高速クラスターイオンビームによる物質との相互作用および照射効果の解明  
(共同研究)

日本原子力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  
(編) 斎藤 勇一、柴田 裕実\*

(2009年12月18日受理)

本研究レビューは平成18年度から20年度までの3年間行われた、連携重点研究「高速クラスターイオンビームによる物質との相互作用および照射効果の解明<sup>\*</sup>」の研究成果をまとめたものである。それぞれの研究結果概要とともにそれらの内容を示すものとして、最終年度に行われたグループ内研究会(平成21年3月)または「高LET放射線研究会～物理・化学・生物の基礎研究から医学応用まで～」(主催：日本放射線化学会「先進放射線化学シンポジウム SARAC2009」、共催：本連携重点研究グループ)で用いた図表を収録した。

---

本研究は日本原子力研究開発機構と京都大学との連携重点研究制度による共同研究に基づいたものである。

高崎量子応用研究所：〒370-1292 群馬県高崎市綿貫町1233

\*京都大学大学院工学研究科

※研究代表者

原子力機構 平成18年：神谷富裕、平成19年：横田渉、平成20年：小嶋拓治  
京都大学 柴田裕実

Study on Interaction of Swift Cluster Ion Beam with Matter and Irradiation Effect  
(Joint Research)

(Eds.) Yuichi SAITOH and Hiromi SHIBATA\*

Department of Advanced Radiation Technology  
Takasaki Advanced Radiation Research Institute  
Japan Atomic Energy Agency  
Watanuki-machi, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received December 18, 2009)

This review covers results of the “Study of interaction on swift cluster ion beam with matter and irradiation effect ※ ” supported by the Interorganization Atomic Energy Research Program from 2006FY to 2008FY. It is composed of a research abstract for each sub-group with viewgraphs which were presented at the group meeting held on March 2009 or “Meeting of High LET radiation -From fundamental study among physics, chemistry and biology to medical applications-“ sponsored by Japan Society of Radiation Chemistry, cosponsored by this research group.

Keywords: Swift Cluster Ion, Interaction, Irradiation Effect

---

These works have been performed in the Inter-organizational Atomic Energy Research Program in an academic collaborative agreement between the JAEA and the Kyoto University.

\* Department of Nuclear Engineering Kyoto University

※Representative

JAEA; Tomihiro Kamiya(FY2006), Wataru Yokota(FY2007), Takuji Kojima(FY2008)  
Kyoto Univ.; Hiromi Shibata

目次

1.	はじめに	.....	1
2.	研究グループの構成	.....	3
3.	研究成果		
3.1	薄膜を通過させたクラスターイオンの電荷測定	.....	7
3.2	高速クラスターイオンの生成	.....	18
3.3	高速クラスターイオン照射による 2 次イオン放出と高感度表面分析	.....	30
3.4	高速クラスターイオン衝突による標的からの荷電粒子・光放出過程と照射効果の研究	.....	42
3.5	Si 表面に対する 10-100keV 領域 C <sub>60</sub> イオンの衝撃効果	.....	55
3.6	高分子ナノ構造形成から見積もられた凝縮相中のクラスターイオン相互作用過程の定量評価	.....	66
3.7	FeRh 合金薄膜の磁性におけるクラスターイオン照射効果	.....	79
3.8	高速 C <sub>2</sub> <sup>+</sup> イオン衝突による炭素薄膜からの二次電子放出	.....	92
3.9	高速クラスターイオン照射による標的電子励起の非線形効果	.....	100
付録	関係発表論文・特許(2006-2009)	.....	117

Contents

1.	Preface	.....	1
2.	Research Group	.....	3
3.	Reports		
3.1	Charge state measurement of cluster ions passing through a thin foil	.....	7
3.2	Generation of swift cluster ion	.....	18
3.3	Secondary ion emission from polymer and semi-conductor upon cluster ion impacts and high sensitivity surface analysis using cluster ion	.....	30
3.4	Secondary ions and luminescence from a target bombarded by swift cluster ion	.....	42
3.5	Energy Dependence of Sputtering Yield of Si Induced by 10-100 keV C <sub>60</sub> Ions	.....	55
3.6	Visualization of a single cluster particle track in polymeric materials	.....	66
3.7	Effect of cluster ion irradiation on the magnetic properties of FeRh thin films FeRh	.....	79
3.8	Vicinage effect on secondary-electron emission from amorphous carbon foils induced by swift C <sub>2</sub> <sup>+</sup> ions	.....	92
3.9	Nonlinear Effect of electric excitation in a target by swift cluster ion irradiation	.....	100
	Appendix Published Journal and patent (2006-2009)	.....	117

## 1. はじめに

クラスターイオンビームの利用は、低速（低エネルギー）領域の分野では既に産業への応用まで進んでいるのに対し、高速（高エネルギー）領域の分野においては、世界的にも未だ基礎的な研究を行っている段階である。それは、低エネルギー衝突現象では核的衝突が主で、第一原理的な計算手法によるシミュレーションが現象の解明に有効であるのに対して、高エネルギー衝突現象では、高密度電子励起を主とした非線形なエネルギー付与過程を扱うため、シミュレーションが困難なことが要因の一つであると考えられる。従って、照射実験が研究推進の大きな手段となる。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)には、日本で唯一の MeV エネルギー領域のクラスターイオンを用いた照射実験が可能な施設として平成 10 年から機構内及び国内の研究者が集結し、平成 15 年度から 17 年度まで連携重点研究「クラスターイオンビームと固体との相互作用及び照射効果の解明」に基づいて、衝突基礎課程等の研究が行われた(JAEA-Review 2004-009)。その結果、高速クラスターイオンビーム照射では①物質内での高密度電子励起により、高分子等の表面に特異な結合の変化を起こすこと、②低速クラスターが物質の表面近傍にのみ作用するのに対し、内部への効果も期待できること、③2 次イオン放出量に正の非線形効果が現れ、表面分析へ応用が期待されることなどが明らかになった。

これらの成果をさらに発展させるために、連携重点研究「高速クラスターイオンビームによる物質との相互作用および照射効果の解明」が平成 18 年度にスタートして、MeV エネルギーに加速されたクラスターイオンの構造、その衝突反応過程、及び照射効果の研究として、1) クラスターイオン衝突における物質からの 2 次イオン、光の放出過程の研究、2) クラスターイオンの構造と生成の研究、3) クラスターイオンの照射効果研究、の 3 分野の研究が 6 研究グループによって行われた。

1) の研究では「高速クラスターイオン衝突による標的からの荷電粒子・光放出過程と照射効果の研究」および「高速クラスターイオン照射による高分子の高密度電子励起状態の分光と可視化」グループを中心に、高速クラスターイオン・物質相互作用として重要なテーマの一つである電離過程を研究するため、クラスターイオンと金属・セラミックス・ポリマーなどの固体との衝突で生じる 2 次荷電粒子の質量スペクトル、エネルギースペクトル、光スペクトル、及びそれらの収量をイオン種、クラスター数、標的の種類などをパラメータにして計測し、これらの結果を基に、クラスターイオン誘起による 2 次イオン、光放出現象の非線形性の存在を確認し、クラスタービーム特有の相互作用に迫った。

2) の研究では「クラスターイオンビーム照射の制御に関する研究」グループを中心に、クラスター構造を解析する方法として、クラスターを高エネルギーに加速し、薄膜を通過させてクーロン爆発を利用する直接観測を開発し、形状と電荷などの物量の関係を調べ、物質透過中の近接作用について様々な知見を得た。また、タンデム加速器でクラスターイオンを加速するときの荷電変換ガスについて、解離断面積、荷電変換断面積を求め、最適

なガス種を検討した。

3) の研究では「カーボンクラスターイオンによる非線形照射効果の研究」、「C<sub>60</sub> 等のクラスターイオンの衝撃効果を利用した炭素同素体変換」および「クラスターイオンの照射効果に関する研究」グループが中心になり、高密度エネルギー付与による局所的磁性の変化にクラスター効果を見出した。また、C<sub>60</sub> 照射によるシリコン基盤のスパッタ率を同定して、衝突メカニズムの解明に迫った。

これらの結果から、高速クラスターイオンは、単原子イオンではできない極限状態を物質中に創成する新たな量子ビームとの確証が得られたため、平成21年度からは連携重点研究「高速クラスターイオンが固体内に誘起する高密度・高励起反応場における素過程と材料分析・改質の研究」として、具体的な材料改質や分析技術の開発を目指し、高速クラスターイオン照射技術の確立を図る。

なお連携重点研究は、日本原子力研究開発機構と東京大学大学院工学系研究科原子力専攻の間の協力で行われたものである。



## 2. 研究グループの構成

本研究は、原子力機構、京都大学、大阪府立大学、大阪大学、岡山理科大学、産業技術総合研究所が参加し、6つのサブ研究テーマに分かれて行われた。各テーマ名とサブグループ代表者及び連携構成を以下に示す。

### (サブグループ1)

「クラスターイオン照射の制御に関する研究」

斎藤勇一（原子力機構）

### (サブグループ2)

「高速クラスターイオン衝突による標的からの二次荷電粒子放出過程と照射効果の研究」

柴田裕実（京都大学）

### (サブグループ3)

「クラスターイオンの照射効果に関する研究」

平田浩一（産業技術総合研究所）

### (サブグループ4)

「カーボンクラスターイオンによる非線形照射効果の研究」

岩瀬彰宏（大阪府立大学）

### (サブグループ5)

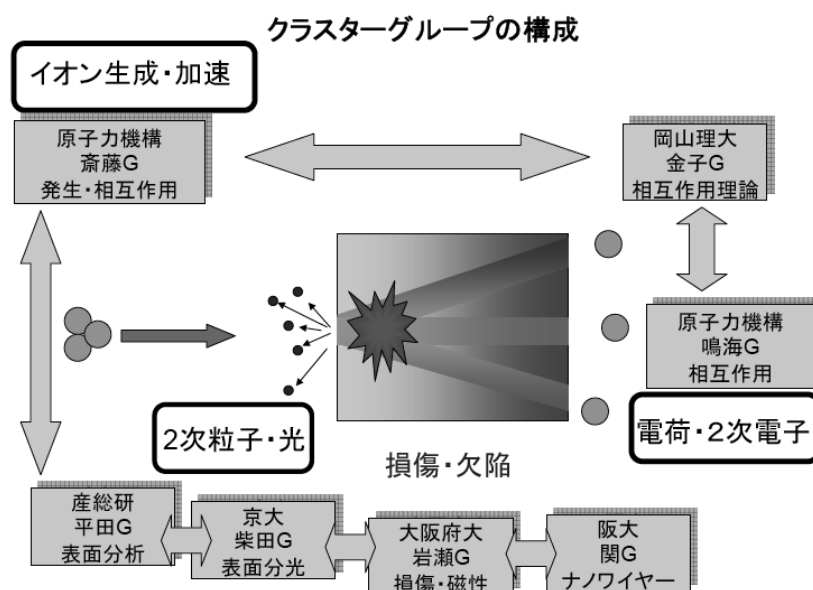
「C60等のクラスターイオンの衝撃効果を利用した炭素同位体変換」

鳴海一雅（原子力機構）

### (サブグループ6)

「高速クラスターイオン照射による高分子の高密度励起状態の分光と可視化」

関 修平（大阪大学）



This is a blank page.

## 3. 研究成果

This is a blank page.

### 3.1 薄膜を通過させたクラスターイオンの電荷測定 —配向角度とクラスター構造の選別—

原子力機構・高崎研 千葉敦也、斎藤勇一、山田圭介  
原子力機構・先端基礎 鳴海一雅、高橋康之  
岡山理大 金子敏明

クラスターイオンは空間的に極めて狭い領域（～Å）に複数の原子を同時に照射することができるため、単原子イオンの場合とは異なり、集団的作用による特異な照射効果が期待でき、物質との相互作用に関する研究は数多く報告されている。数十 keV 以下の低エネルギークラスターイオンが物質表面に及ぼす作用はスパッタリングなど核的阻止能に起因する効果が主となるが、Bohr 速度以上の高エネルギークラスターイオンの場合、電子的阻止能に起因する効果が主となり、その衝突現象はより複雑になると考えられる。更に、クラスターイオンと固体との相互作用や照射効果の反応機構の解明には、固体内で解離したクラスター構成イオン相互の空間配置を取り入れた議論展開が重要視されており、そのためには、クラスターサイズ依存性に加え、構造依存性及び固体入射時のクラスター軸角度（配向角）依存性などを考慮する必要がある。しかし、クラスターサイズは容易に選別して照射できるのに対し、クラスターの構造や配向角については制御が難しいため、照射効果に対するそれらの依存性に関する実験はこれまでほとんど行われてこなかった。一方で、クラスターイオンの構造や配向角の観測は行われてきた。主な実験としては、薄膜にクラスターイオンを透過させ、クーロン爆発によって広がったクラスター解離イオンの空間分布から薄膜透過前の構造や配向角を推察する手法[1]が取られてきた。我々は、こうした観測手法をもとに、クラスターイオン制御技術の確立を目指し、薄膜透過後の各解離イオンの空間分布と電荷の同時測定が可能なシステムを構築し、クラスターの構造や配向角の同定に加え、クラスターイオン独自の構造や配向角に依存した物理的性質に関する新たな知見を得るための実験を試みてきた。測定系の概略を図1に示す。実験には高崎量子応用研究所の 3MV タンデム加速器を使用した。クラスターイオンビームはアパーチャスリット及びチョッピング電極によってパルス化され毎秒 1～2 個程度が炭素薄膜（ $1.0\mu\text{g}/\text{cm}^2\sim 2.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ）を透過する。解離イオンの空間分布は蛍光出力タイプのマイクロチャンネルプレート（MCP）背面に発光点として表示され、MCP 後方のカメラによって位置分解能が  $140\mu\text{m}$  以下の画像データとしてイベント毎に取得される。また、解離イオンの電荷は薄膜後方の平行平板電極の電場による偏向角から見積もることができる。本測定系によってこれまでに、小規模なサイズ

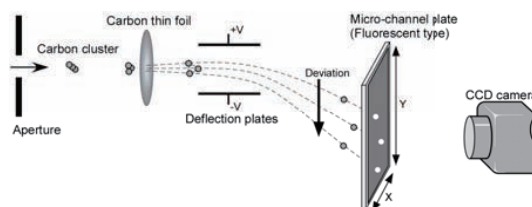


図1. 測定方法の概略

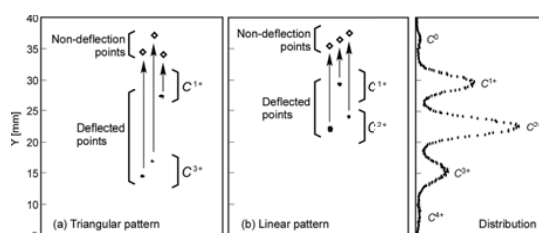


図2. 構造選別方法の概略。垂直成分の偏向距離を加えることで偏向しない場合に解離イオンが到達する位置（◇）が求められる。(a)は環状構造、(b)は鎖状構造として選別される。(c)はすべての発光点をx軸方向に積分したものであり、電荷毎の到達位置を示す。

の炭素クラスターに対し鎖状構造と環状構造が存在することを指摘している[2]。ここで、鎖状構造と環状構造の選別は、検出された発光点から平行平板電極の電場で偏向された垂直成分の距離を加えることで偏向しない場合の発光点分布を算出し、モンテカルロ粒子軌道シミュレーションによって構造を同定している(図2参照)[3]。こうした構造の違いは、固体内における解離イオン間に作用する近接効果と解離イオン相互の空間配置の関係を探る上で有効であり、クラスターイオンと固体との近接効果を伴う反応機構の解明において重要な要素と考えられる。そこで、我々は  $\text{C}_3^+$  に着目し、薄膜透過後の解離イオンの電荷が構造の違いによる固体内での解離イオン相互の空間配置の違いによってどのように変化するかを調べた。 $1\text{MeV}/\text{atom}$  の  $\text{C}_3^+$  について3種の膜厚にて構造毎に約1万の発光点を解析した結果、表1に示すようにクラスター解離イオンの平均電荷は鎖状構造の方が環状構造よりも大きくなること、更に、鎖状構造において、両端に位置するイオンのほうが中心のイオンよりも平均電荷が大きくなること分かった。実験結果は、固体中でのクーロン爆発と近接するイオン間の静電場の影響を考慮した計算結果と良い一致を見た[4]。以上のことから固体内で

表 1. 平均電荷の構造依存性

Foil μg/cm <sup>2</sup>	Linear	Ring	Center	Edge
1.1	1.86±0.02	1.80±0.02	1.78±0.03	1.90±0.03
2.0	1.90±0.01	1.85±0.01	1.81±0.02	1.94±0.02
2.4	1.96±0.03	1.89±0.02	1.86±0.04	2.01±0.03
2.4 (Cal.)	1.91	1.89	1.88	1.93

の解離イオンの電荷はクラスターの空間的相対性と強い相互関係にあることが分かった。一方、配向角に関する実験では、これまでに、6MeV の C<sub>2</sub><sup>+</sup>及び B<sub>2</sub><sup>+</sup>について検出された2つの発光点の間隔から求まる解離イオンの発散角をもとに、薄膜入射直後の配向角を粒子軌道計算で見積もり、配向角と平均電荷の関係を調べた。C<sub>2</sub><sup>+</sup>を炭素薄膜に透過させた解離イオン（3価のペア）の発散角分布をクーロン爆発と多重散乱を考慮した粒子軌道計算の結果とともに図3に示す。計算結果のイベント数は実験結果と同じである。計算は遮蔽型のクーロンポテンシャル  $\Phi(r)=(Z_1Z_2e^2/r)\exp(-r/a)$  を基本とした。ここで、Z<sub>1</sub>e<sup>2</sup>、Z<sub>2</sub>e<sup>2</sup> は薄膜内での各解離イオンの電荷であり、a は  $a=v/\omega_p$ 、炭素標的のプラズマ振動数  $\omega_p$  とイオンの速度 v で与えられる遮蔽長である。また、解離イオンの電荷は薄膜透過後の平均電荷（測定値）とした。2つの分布を比較すると、発散角の大小でその割合が大きく異なっていることが分かる。広角側に見られる分布のピークは配向角がビーム軸に垂直であった場合の発散角を示している。発散角の小さいものは配向角がビーム軸に平行に近いものであり、実験結果ではその割合が軌道計算の結果よりも多いことが分かった。どの段階でビーム軸方向の角度成分の割合が増加したのかは、現状では判断できない。ビーム輸送過程であるならば、タンデム加速器の高電圧ターミナル内部の荷電変換ガス透過時におけるクラスターの解離断面積の配向角依存性が起因していると考えられる。一方、薄膜内部であるならば、標的電子の動的分極で作用するウエイクポテンシャルによって配向したものと考えられる。次に、発散角から導いた配向角と平均電荷率 (Q<sub>w</sub>/Q<sub>1</sub>) の関係を C<sub>2</sub><sup>+</sup>と B<sub>2</sub><sup>+</sup>について図4に示す。平均電荷率は1に近づくほど近接効果の影響が少ないと解釈できる。C<sub>2</sub><sup>+</sup>の解離イオンの平均電荷率よりも B<sub>2</sub><sup>+</sup>の解離イオンの方が大きいことは、B<sub>2</sub><sup>+</sup>の初期核間距離が C<sub>2</sub><sup>+</sup>よりも長く、近接効果の影響が少なかったことによると考えられる。また、C<sub>2</sub><sup>+</sup>と B<sub>2</sub><sup>+</sup>のいずれにおいても配向角が小さいほど平均電荷は大きくなっている。これは、配向角が小さい場合では解離イオン相互の空間配置に依存した何らかの原因によって近接効果を弱める作用が働き平均電荷率が1に近づいたとする考え方もできるが、逆に電荷の大きいものがウエイクポテンシャルの影響により配向したとも考えるこ

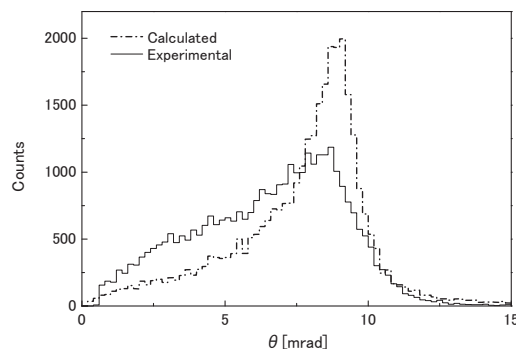


図 3. 1.0μg/cm<sup>2</sup> の炭素薄膜を透過した 6MeV- C<sub>2</sub><sup>+</sup>解離イオンの発散角分布 (3 価のペア)。実線は実験値、破線は計算値を示す。

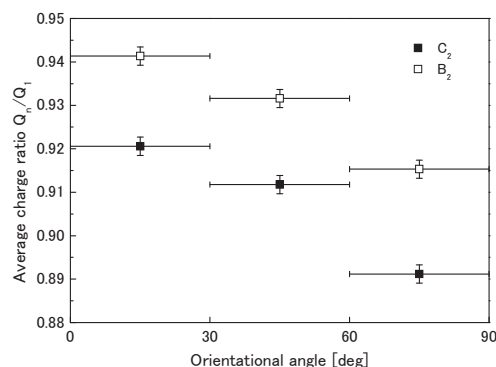


図 4. 1.0μg/cm<sup>2</sup> の炭素薄膜を透過した 6MeV の C<sub>2</sub><sup>+</sup>及び B<sub>2</sub><sup>+</sup>解離イオンの平均電荷率と配向角の関係。

とができる。今後、ウエイクポテンシャルが発現しにくいと考えられる絶縁性薄膜やガスを標的とした実験を行い、クラスターイオンの配向角について、どの段階でビーム軸に平行に近い角度成分が増加したのかを明らかにする予定である。

References

[1] Z. Vager, R. Naaman, E. P. Kanter, *Science* 244 (1989) 426.  
 [2] A. Chiba, Y. Saitoh, and S. Tajima, *Nucl. Instrum. Method Phys. Res. B* 232 (2005) 32.  
 [3] M. Adachi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, K. Yamada, T. Kaneko, *Radiat. Phys. Chem.* 77 (2008) 1328-1332.  
 [4] A. Chiba, Y. Saitoh, K. Narumi, M. Adachi, T. Kaneko, *Phys. Rev. A* 76 (2007) 063201-1-6.



## 薄膜を通過させた高速クラスターイオンの電荷測定 ～配向角度とクラスター構造の選別～

○千葉敦也<sup>1</sup>、斎藤勇一<sup>1</sup>、鳴海一雅<sup>2</sup>、  
高橋康之<sup>2</sup>、山田圭介<sup>1</sup>、金子敏明<sup>3</sup>

- 1: 日本原子力研究開発機構・放射線高度利用施設部
- 2: 日本原子力研究開発機構・先端基礎センター
- 3: 岡山理科大学

高LET放射線研究会 2009.7.30-

## 薄膜を透過したクラスター解離イオンの平均電荷

2-MeV/atom,  $C_n^+$   $\rightleftharpoons$  Carbon foil:  $2.2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$

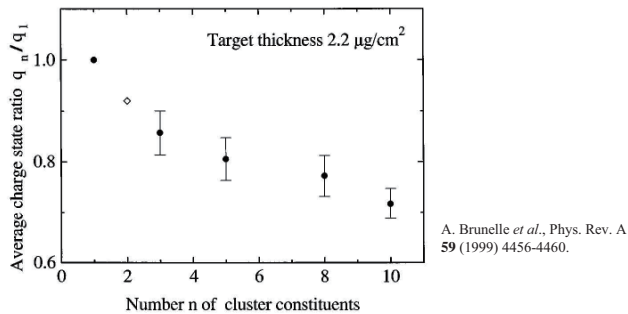
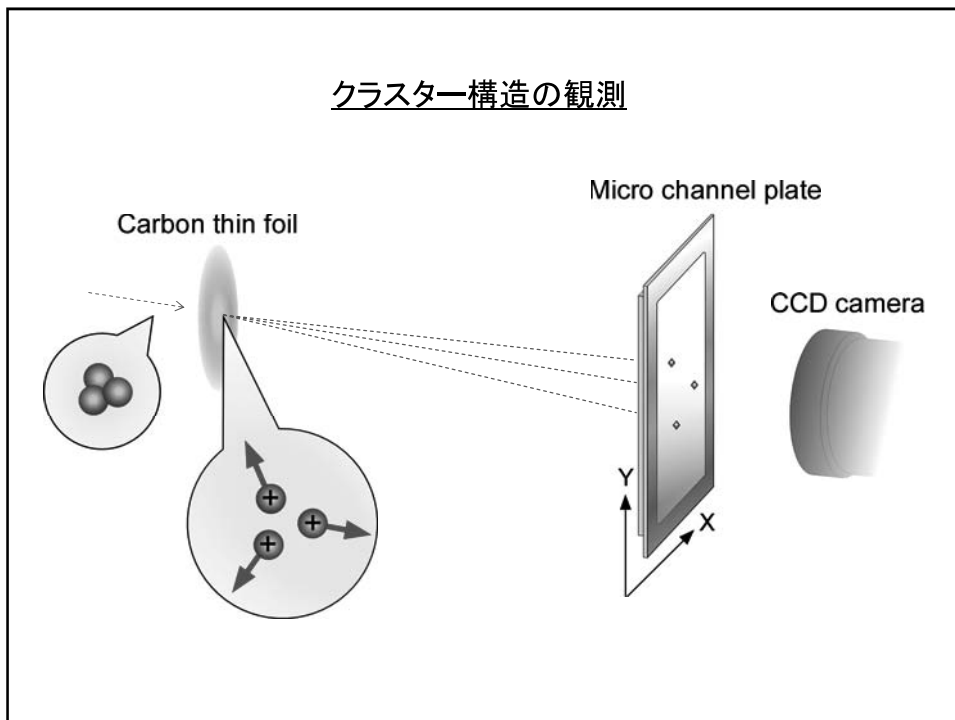
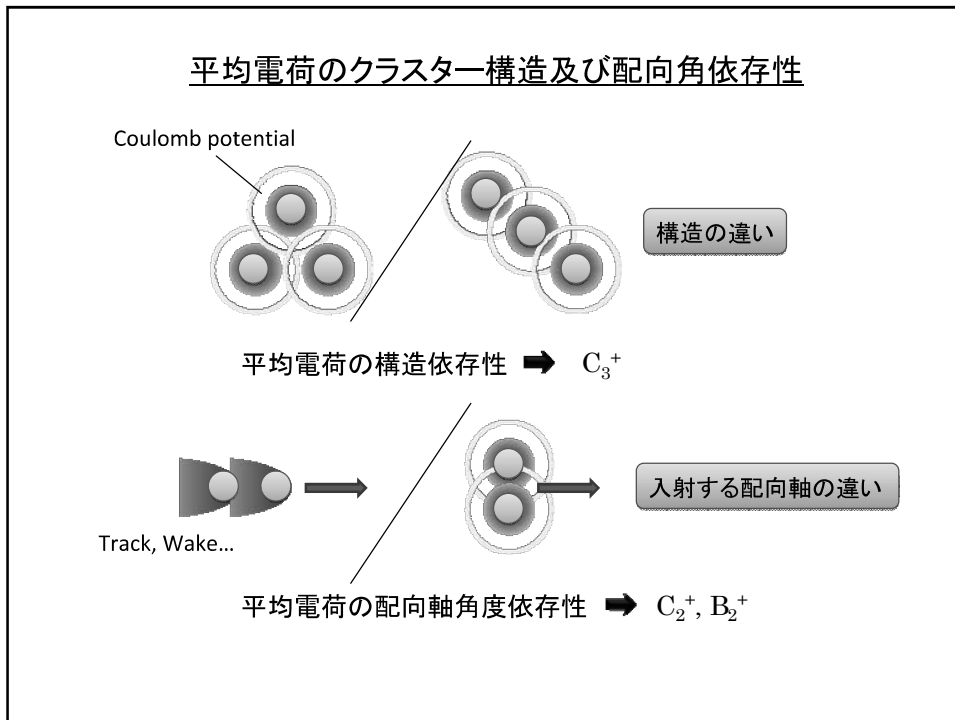
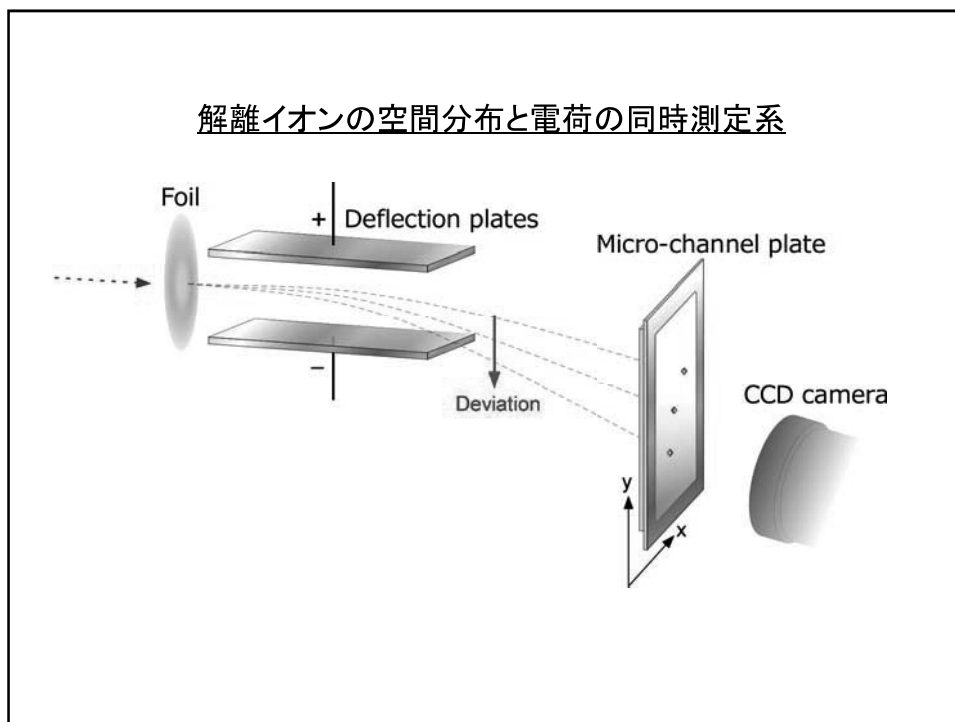
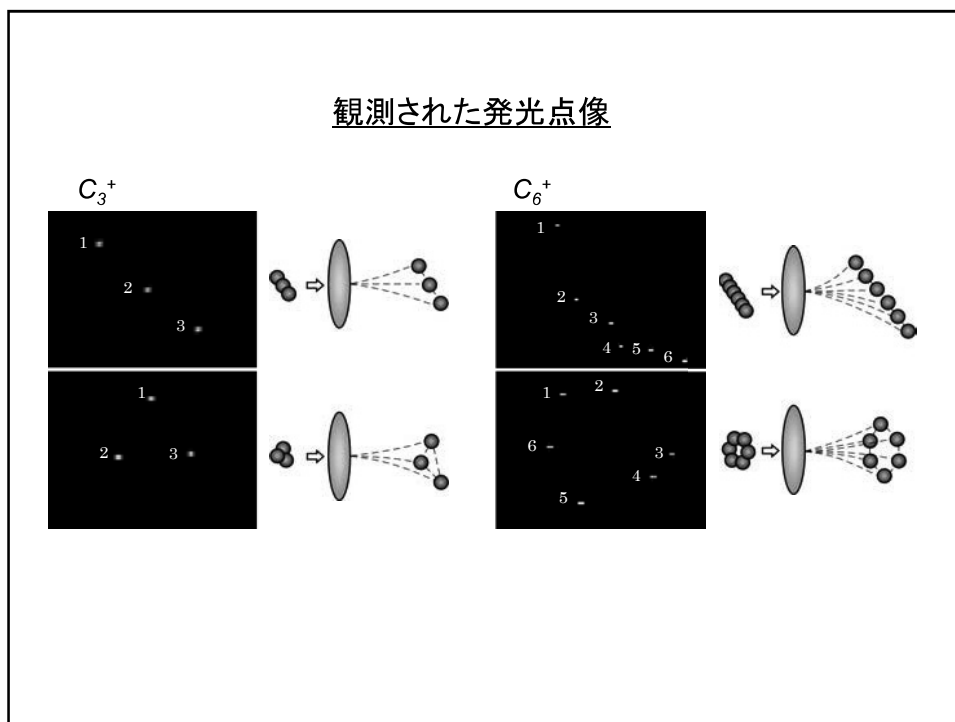


FIG. 3. Evolution with the number  $n$  of cluster constituents of the charge ratio  $\langle q_n \rangle / \langle q_1 \rangle$ , measured at the exit of a  $2.2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  carbon foil, for 2-MeV/atom carbon cluster projectiles. The diamond symbol shows data extracted from Ref. [7] for 2.1-MeV/atom  $N_2$  projectiles.

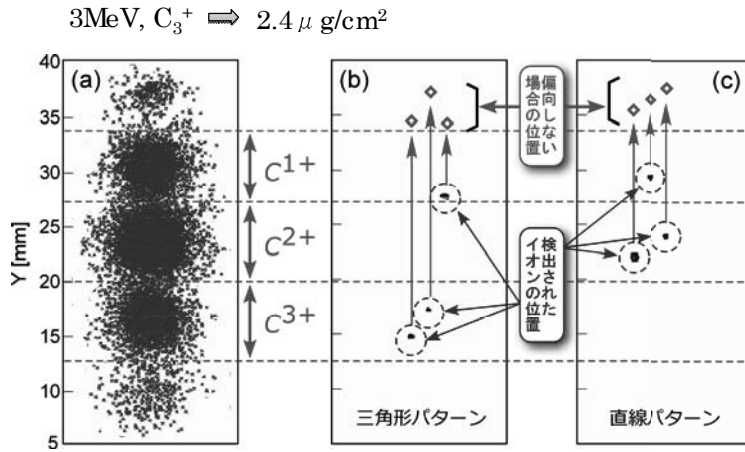
解離イオンの平均電荷と薄膜内部での解離イオン相互の空間配置の関係は？







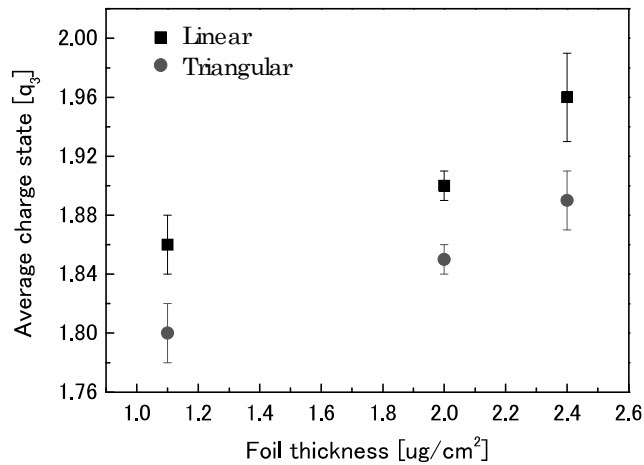
### クラスター構造の選別法



偏向しない場合の位置からモンテカルロ粒子軌道シミュレーションで構造を同定

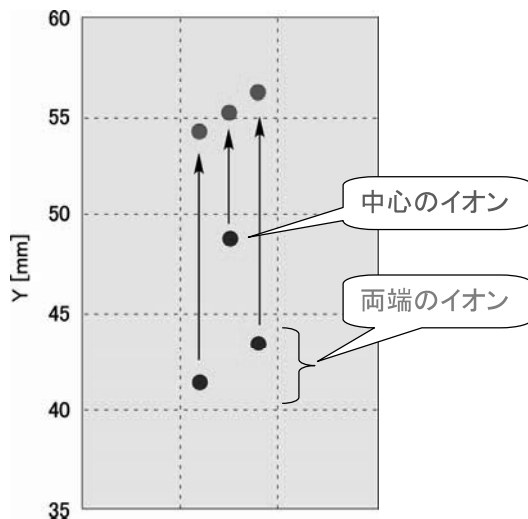
### クラスター構造別平均電荷

3MeV,  $C_3^+$   $\Rightarrow$   $1.1 \mu g/cm^2$ ,  $2.0 \mu g/cm^2$ ,  $2.4 \mu g/cm^2$



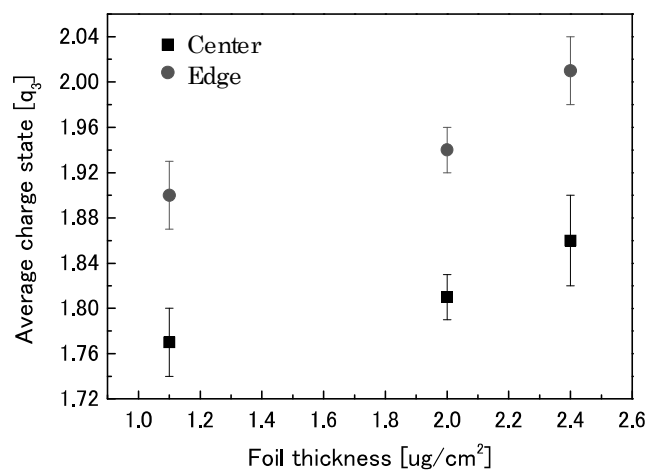
$\Rightarrow$  三角構造の方が近接効果の影響が大きい

構成原子の配置と電荷の関係(鎖状構造)は・・・



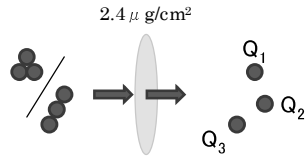
配置別(鎖状構造)平均電荷

3MeV,  $C_3^+$   $\Rightarrow$   $1.1 \mu g/cm^2$ ,  $2.0 \mu g/cm^2$ ,  $2.4 \mu g/cm^2$



$\Rightarrow$  中心のイオンの方が近接効果の影響が大きい

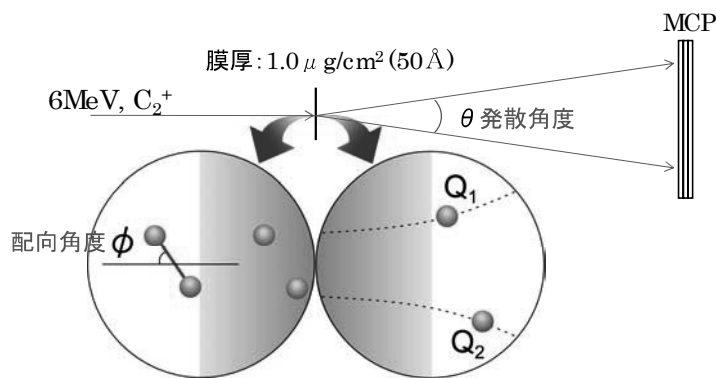
平均電荷の構造依存性



	Linear	Triangular	Center	Edge
Experiment	$1.96 \pm 0.03$	$1.89 \pm 0.02$	$1.86 \pm 0.04$	$2.01 \pm 0.03$
Calculation	1.91	1.89	1.88	1.93

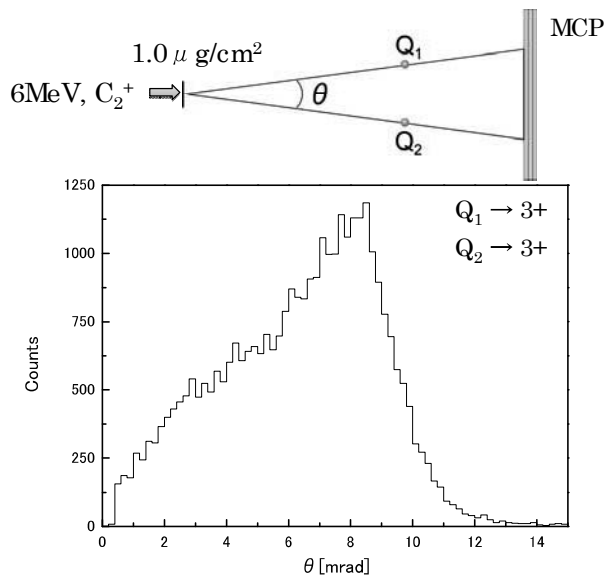
$C_1^+$ :  $2.02 \pm 0.01$

配向角度と平均電荷

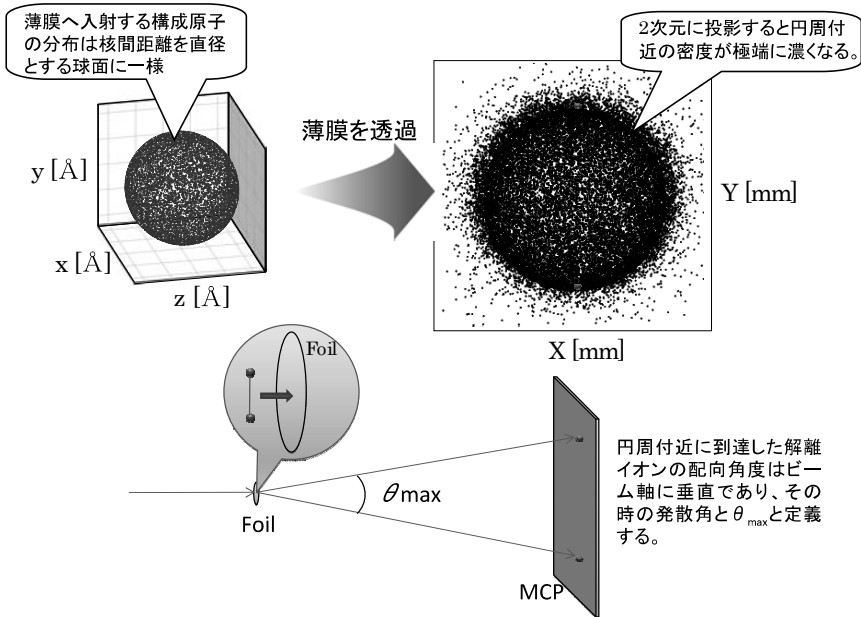


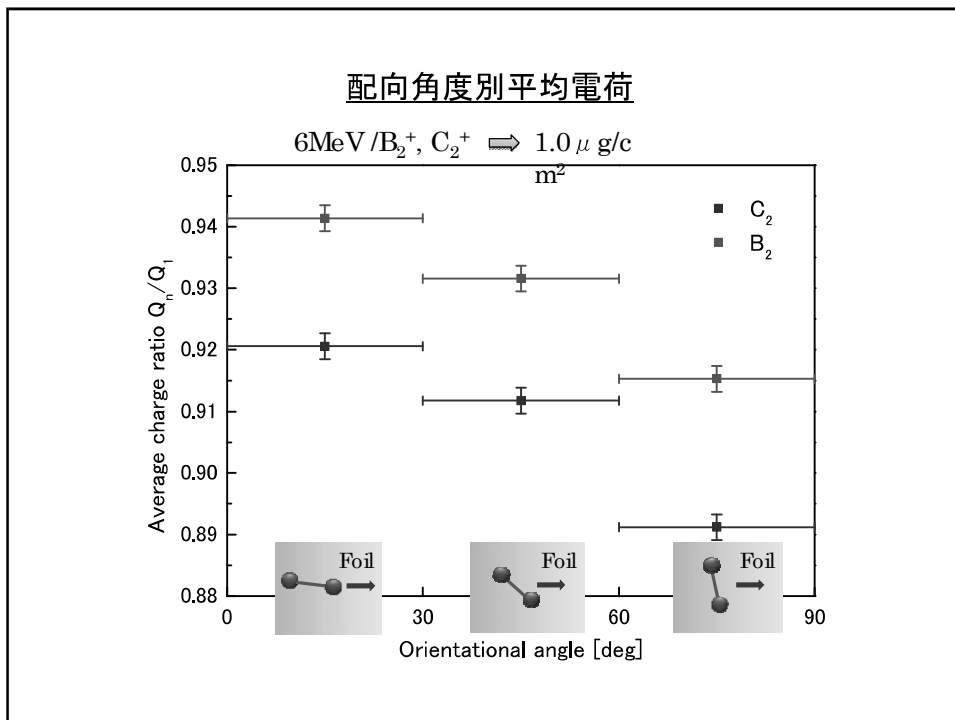
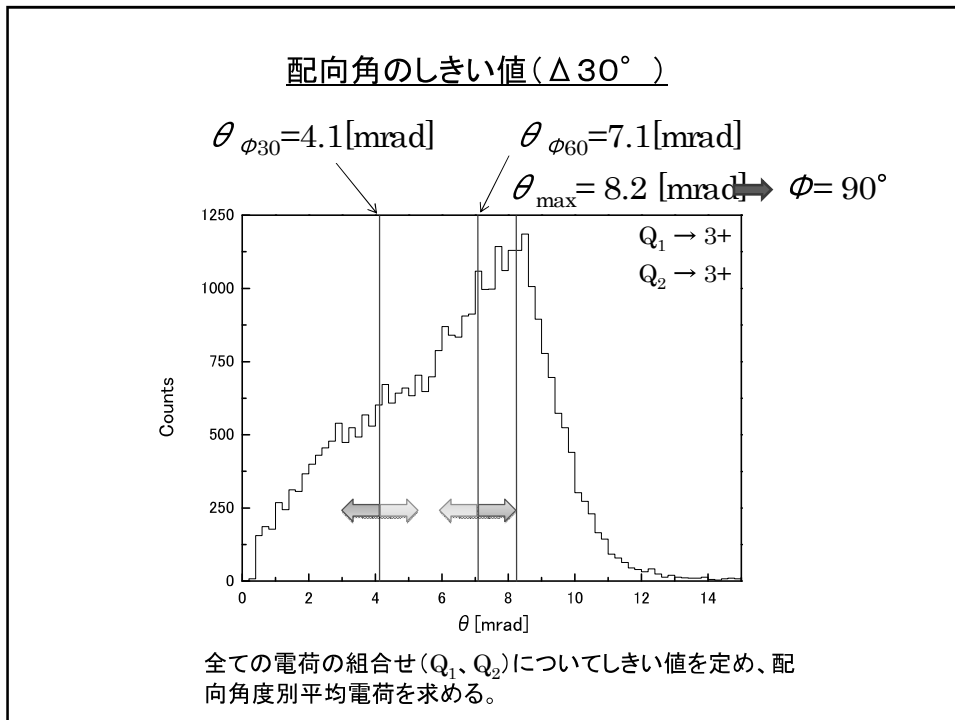
膜厚が非常に薄い  
(多重散乱の影響が少ない) → 配向角度 ↔ 発散角度

### 発散角の測定結果(3価のペア)

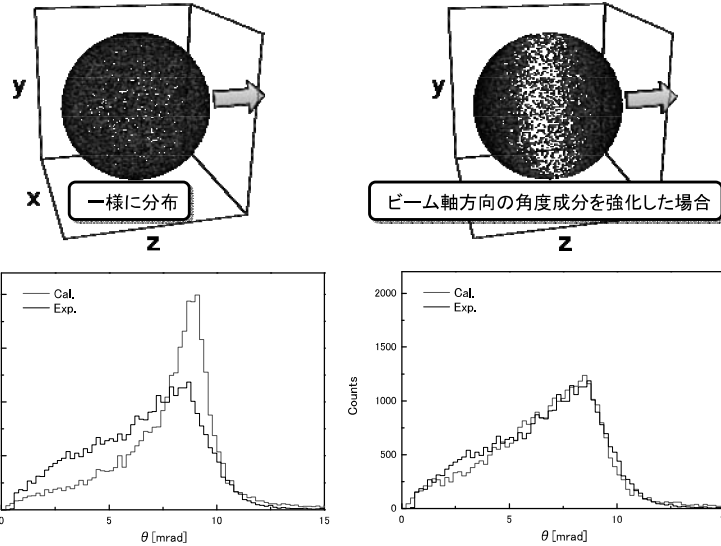


### 解離イオンの2次元分布(計算例)





粒子軌道計算(クーロンポテンシャル&多重散乱)



まとめ

- 炭素薄膜透過後の解離イオンの平均電荷は薄膜内部での解離イオン相互の空間配置に依存する。
- 薄膜を透過したC<sub>2</sub>解離イオンの軌道計算によるとC<sub>2</sub>はビーム軸方向に配向している。

電荷、2次電子、エネルギー損失について解離イオンの空間配置依存性を系統的に解析することで近接効果の機構の解明を目指す。

### 3.2 高速クラスターイオンの生成

原子力機構・高崎研 齋藤勇一、千葉敦也、山田圭介

#### はじめに

複数の原子で構成されるクラスターイオンは、一原子あたりの照射エネルギーを低くすることができるという特徴を活かして、数 keV 領域では例えばホウ素クラスターイオン注入による半導体デバイスの極浅接合の形成などですでに実用化されている[1]。これに対して、MeV エネルギー領域では、原子サイズの距離にほぼ同時に打ち込まれた複数のイオンが、それぞれの飛跡に沿って標的を電子励起する。したがって、クラスター構成原子の一つのイオンが標的を励起した直後、それが緩和する前に次のイオンがやってくるという、空間的・時間的に電子励起作用が重なった環境場の創生が可能となる。これは、クラスターイオン特有のもので、このような場が標的にどのように作用するのかは、まだ詳細には解明されておらず、非常に興味深い。また、応用面でも表面改質、表面解析などで注目されつつある[2]。そこで、我々は電子励起を伴う高速（数百 keV～MeV 領域）クラスターイオンビームを新しいビーム照射形態の一つと考え、高崎研究所イオン照射施設(TIARA)の 3MV タンデム加速器及び 400kV イオン注入器を用いてそれらの生成・加速を行っている。これまで、単原子イオン照射と比較して、損傷形成や 2 次粒子放出などに構成原子数に対しての非線形な増減が観測されている。

#### タンデム加速器クラスター透過率

タンデム加速器で照射可能なクラスターイオンを表 1 に示す[3]。電流値は質量分析後のフェラデーカップで測定したもので、実際の標的への照射ではこれらよりも減少する。最も構成原子数が多いものは C<sub>60</sub> フラーレンの 60 個で、最も質量の大きいものは Au<sub>4</sub> の 792amu である。タンデム加速器をクラスターイオンの加速に用いることのメリットは、汎用のセシウムスパッタ型負イオン源 (SNICS II) を用いて、様々な負クラスターイオンを比較的容易に生成できることと、2 段加速で高エネルギーにすることができることである。一方、クラスターイオンは 2 段加速のためタンデム加速器高電圧ターミナル内で荷電変換ガス（一般的には窒素）と衝突させることにより負イオンから正イオンに荷電変換されるが、これにより、ほとんどのクラスターイオンが解離してしまう。加速器に投入したものの内、解離せずに正イオンになるもの（透過率）は数%以下で、クラスター構成原子数が多くなるほど低下する。そこで我々は、照射ビーム電流の増加を目的に、イオン生成法及び加速方法の工夫を行っている。一例として透過率向上のため荷電変換ガスに着目し、分子数のことなる 4 種類のガス種 (He, N<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, SF<sub>6</sub>) を用いて透過

表 1 TIARA タンデム加速器で利用可能な分子・クラスターイオン  
(電流値：nA、エネルギー～6MeV～)

イオン種 \ 原子数	2	3	4	5	6	7	8	9	10	60
B	64	4	3							
C	900	34	42	3	10	0.8	1.5	0.2	0.02	3x10 <sup>4</sup> /cm.s
O	4									
Al	250	30	2							
Si	190	9	1							
Cu	7	1								
Ag	2.3	2.9	0.009	0.008						
Au	10	0.7	0.002							



率を比較した。その結果、He を用いることにより、窒素より最大で 35%の透過率の向上が見られた[4]。

### タンデム加速器荷電変換ガスの研究

#### 高電圧中の荷電変換ガス圧計測

「静電加速器ビーム発生照射技術の開発」の一環として、タンデム加速器荷電変換部内のガス圧力とビームライン真空計の測定値の関係を導出した。

タンデム加速器の加速効率及び負イオンの荷電変換メカニズムなどを考察するとき、荷電変換部のガス圧力 (Pcell) は重要な情報であるが、高電圧デッキ内にあるため真空計などの測定器を取り付けることが困難であった。これまで、グラウンド側のビームラインの真空度を測定することにより間接的にモニターしていたが、絶対値はわからなかった。

そこで、荷電変換断面積が既知のイオンを加速し、その透過率を測定することによりガスターゲットの密度を求める実験を行った。実験条件は、

イオン種：水素イオン

電圧 0.5MV

荷電変換ガス種：窒素

で、ガス圧 (グラウンド側真空計読み値 Pccg) を変化させて、入射ビーム電流 Iin と加速器透過後の荷電変換されない H<sup>-</sup>ビーム電流 Iout を測定した。透過率 (Iout/Iin) とガス圧の関係を既知の荷電変換断面積を用いてフィッティングすることによりガス密度が求まりそこから、Pcell = 2.54 x 10<sup>-4</sup> Pccg. の関係を導出した。これにより、窒素について Pccg から正確な Pcell の導出が可能となった。

#### 解離・荷電変換断面積

タンデム加速器高電圧部内のターゲットガスとクラスターイオンの衝突による荷電変換及び解離メカニズムの解明を目的に、ターゲットガスとして窒素及びヘリウムを用いて、炭素クラスターイオンの解離・荷電変換断面積をクラスター構成原子数及び衝突エネルギーをパラメータに測定した。その結果、解離断面積は窒素及びヘリウムともに、クラスター構成原子数の増加とともに線形的に増加した。この時、窒素の増加率はヘリウムの約 2 倍であった。また、0.5MeV から 3MeV の範囲では、衝突時のエネルギーによらないことがわかった。荷電変換断面積については、今回の測定範囲では構成原子数の増加及びエネルギーによらずほぼ一定の値であった。これらのことから、解離はターゲットガス原子分子 がクラスターイオンのどの部分に衝突してもおこると考えられる。また、荷電変換については、クラスターの大きさにあまり関係しないことから、それにかかわる電荷がクラスターイオンの特定の位置に局在していることが考えられる。

#### References

- [1] D. T akeuchi, N. Shim ada, J. Matsuo, I. Yamada, Proceedings of the 11th International Conference on Ion Im plantation Technology. V ol. 16-21 (1996) 772.
- [2] K. H irata, Y. Saitoh, A. Ch iba, K. Naru mi, Y. Kobayashi, Y. Ohara, Appl. Phys. Lett. 86, 044105 (2005)
- [3] Y. Saitoh, K. Mizuhashi, S. Tajima, Nucl. Instr. and Meth. A452 (2000) p. 61.
- [4] Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, Rev. Sci. Instrum., 80, 106104 (2009)

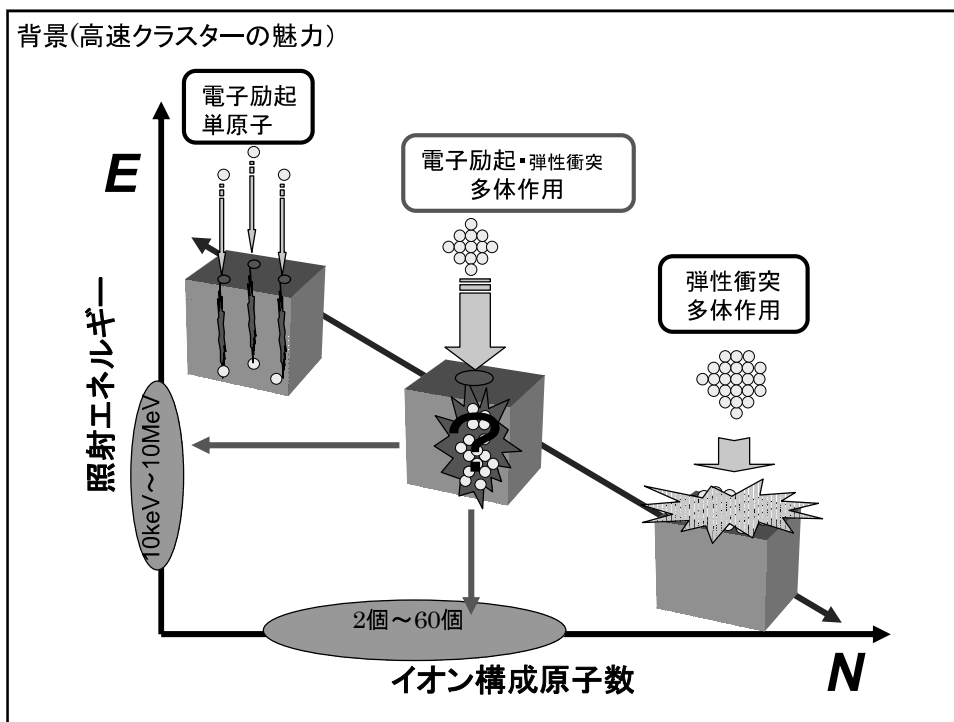
# 高速クラスターイオンの生成

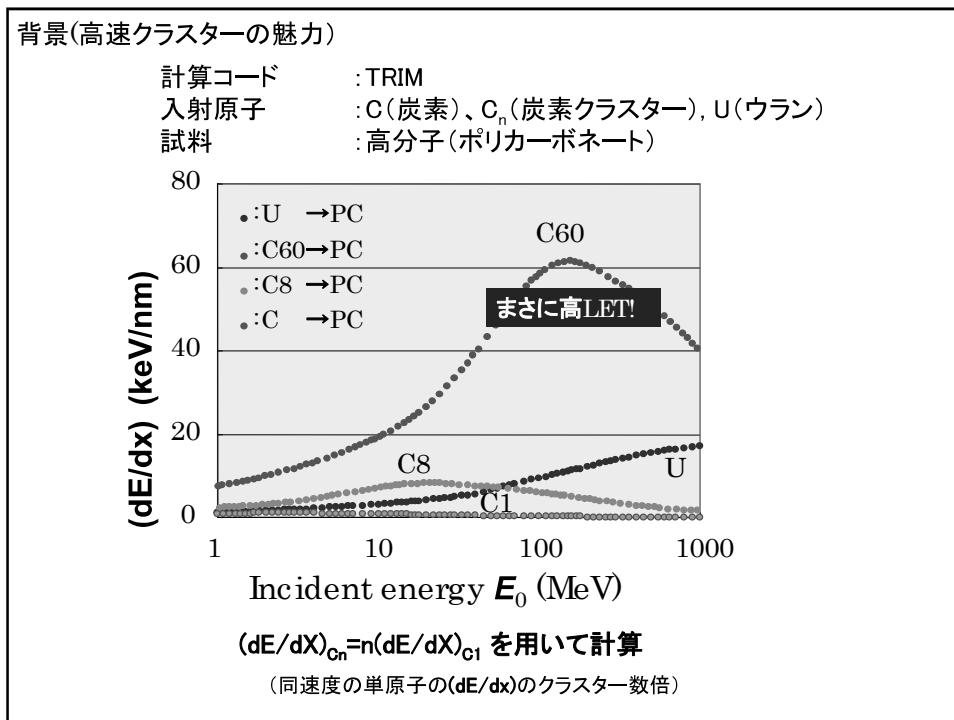
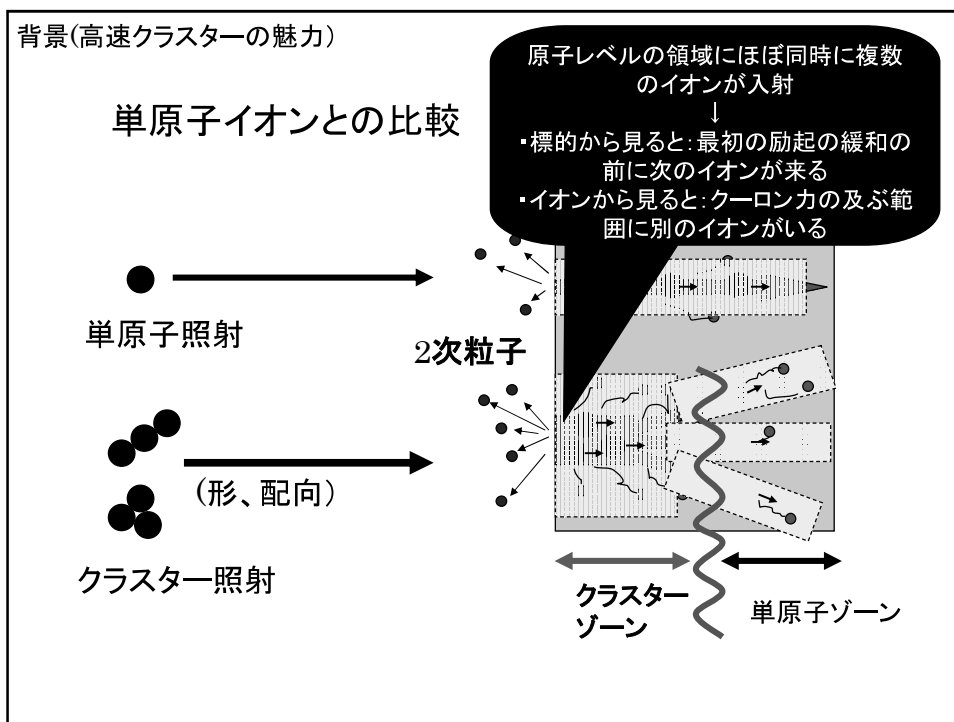
齋藤勇一、千葉敦也、山田圭介

日本原子力研究開発機構  
高崎量子応用研究所・放射線高度利用施設部

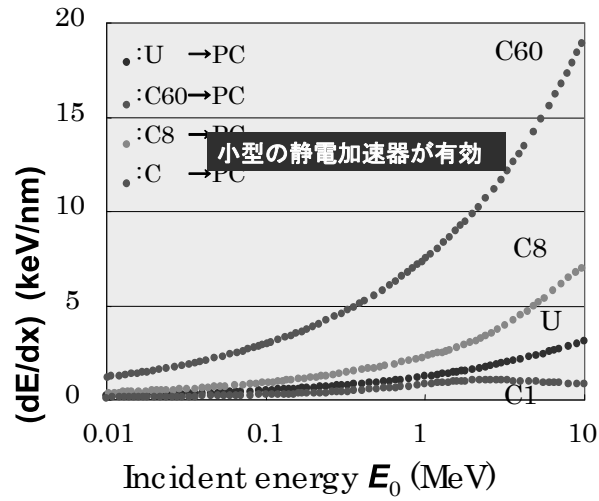
## 目次

- ・背景(高速クラスターイオンの魅力)
- ・タンデム加速器を用いた生成
- ・荷電変換ガスの検討





背景(高速クラスターの魅力)



**タンデム加速器を用いた生成**

タンデム加速器による生成

## クラスターイオンの生成

断熱膨張を利用した生成→希ガス(～数千個)

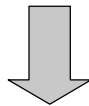
液体金属イオン源→例えばAu(～10個)

電子スプレー式→生体高分子等

スパッターイオン源→多種類(～数10個)

タンデム加速器による生成

MeVエネルギー以上の様々な  
クラスターの生成には



スパッターイオン源+タンデム加速器

タンデム加速器による生成

### 3MVタンデム加速器



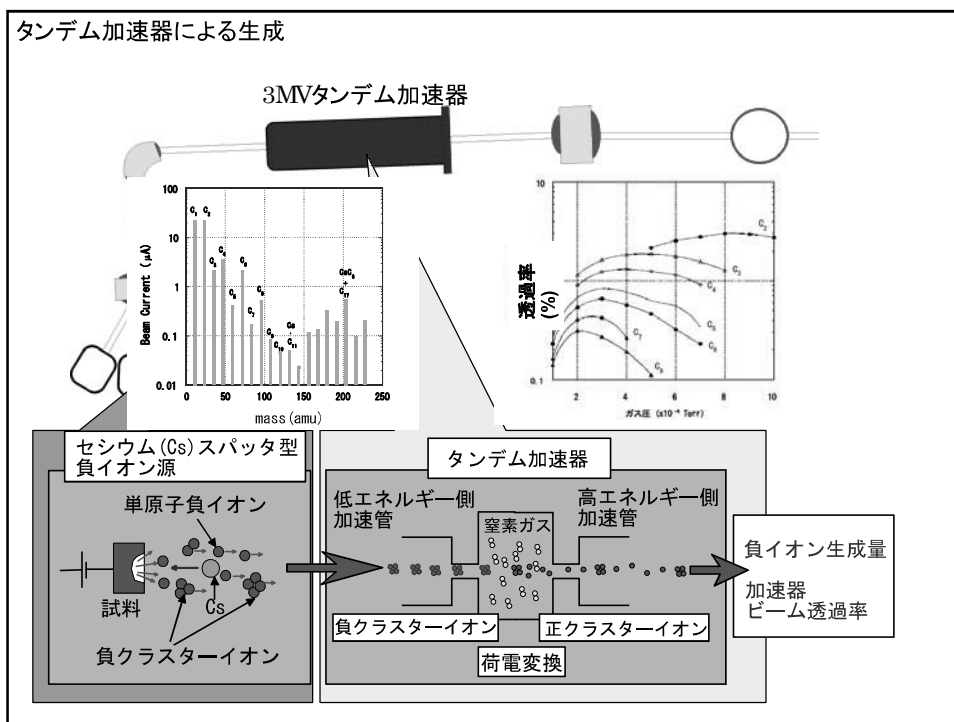
昇圧方式:ペルトロンチェーン  
 イオン源:Csスパッター型負イオン源  
 荷電変換型RFイオン源

高速クラスターイオン・照射施設

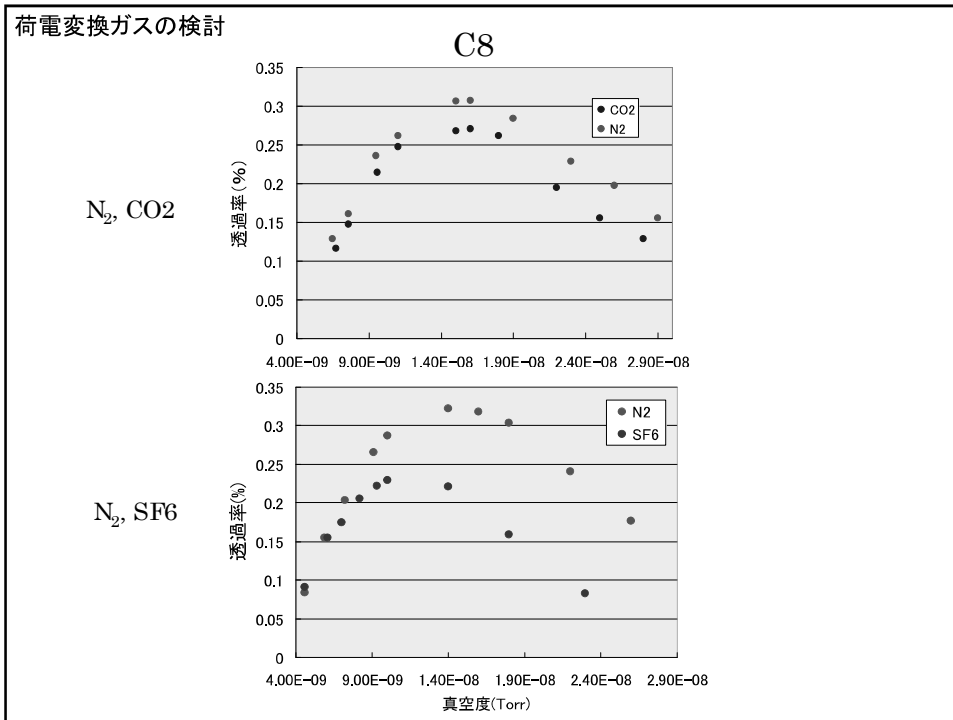
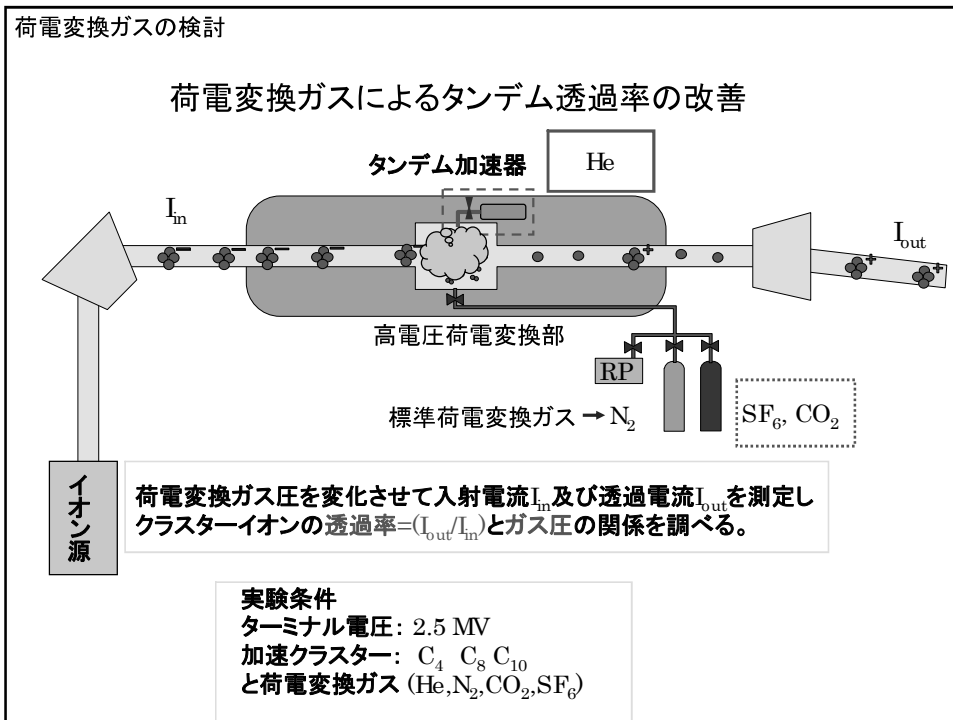
タンデム加速器      ビーム電流 nA、エネルギー: ~6MeV~12MeV

Cluster Size	2	3	4	5	6	7	8	9	10	60
B	64	4	3							
C	900	34	42	3	10	0.8	1.5	0.2	0.02	$3 \times 10^5$ 個 $s^{-1}$
O	4									
Al	250	30	2							
Si	190	9	1							
Cu	7	1								
Ge	7	0.5								
Ag	2.3	2.9	0.009	0.008						
Au	10	0.7	0.002							

400kVイオン注入器       $C_{60}$  ~2 $\mu$ A : ~540keV

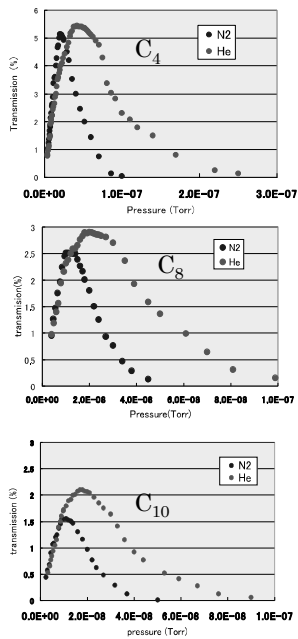


## 荷電変換ガスの検討



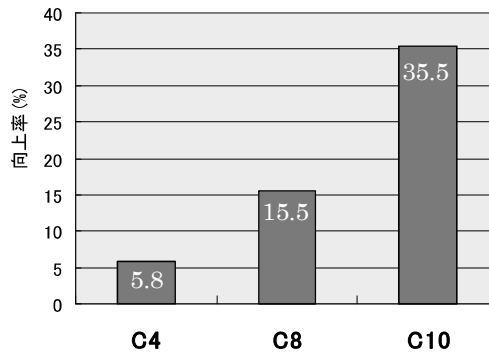


荷電変換ガスの検討



Heと

荷電変換ガスによるクラスター透過率の改善



Heのほうがクラスターイオン加速に適している

荷電変換ガスの検討

解離断面積  $\sigma_d$  と生成断面積  $\sigma_p$

一般的にイオンが荷電変換部距離  $x$  を走って  $q$  価になる確率  $\Psi_q(x)$

$$\Psi'_q(x) = \sum_{\bar{q} \neq q} [\sigma_{\bar{q}q} \Psi_{\bar{q}}(x) - \sigma_{q\bar{q}} \Psi_q(x)] - \sigma_{qd} \Psi_q(x)$$

$\sigma_{\bar{q}q}$  :  $\bar{q}$  価から  $q$  価になる断面積

$\sigma_{q\bar{q}}$  :  $q$  価から  $\bar{q}$  価になる断面積

$\sigma_{qd}$  :  $q$  価のクラスターが解離する断面積

荷電変換ガスの検討

•ここで、電子付着の確率を無視

•1価のみ測定しているのでそれぞれの価数から1価になるものをまとめて→  $\sigma_p$

•また、壊れる確率と2価以上になってしまう確率をあわせて→  $\sigma_d = \sum_{q>1} \sigma_{qq} + \sigma_{qd}$

とすると、微分方程式①の解は、

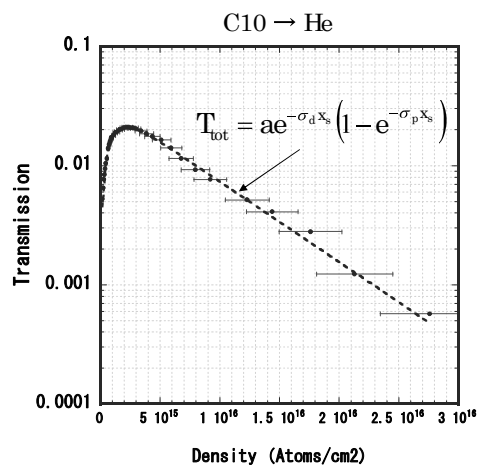
$$\Psi_1(x) = e^{-\sigma_d x} (1 - e^{-\sigma_p x})$$

実際のビーム光学的透過率を $a$ とすると透過率 $T$ は、

$$T_{tot} = a\Psi_1(x_s) = ae^{-\sigma_d x_s} (1 - e^{-\sigma_p x_s})$$

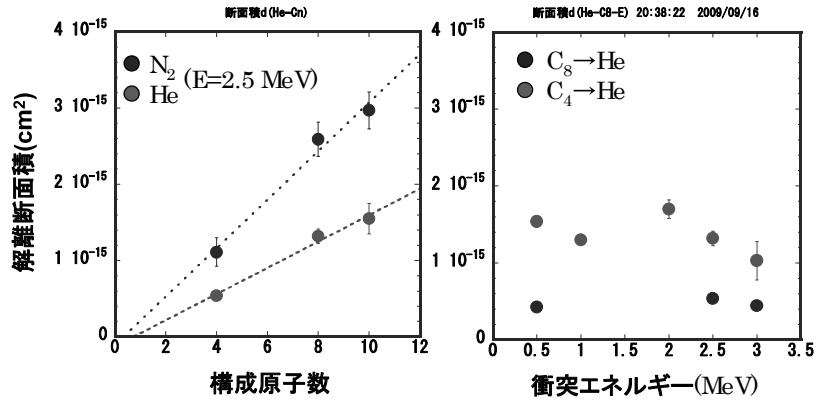
( $x_s$ はガス密度、また荷電変換は荷電変換セル内のみでおけると仮定)

荷電変換ガスの検討



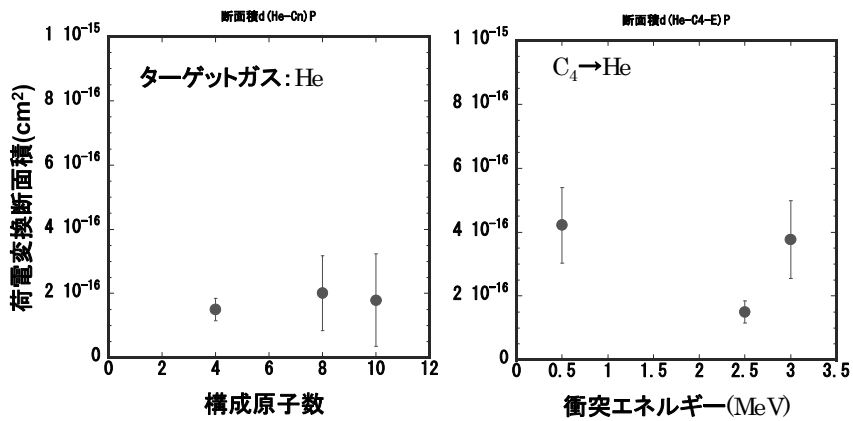
ターゲットがガスの衝突によるクラスターイオンの  
解離断面積( $\sigma_d$ )・荷電変換断面積( $\sigma_p$ )の導出が可能

### 解離断面積 ( $\sigma_d$ )



- 構成原子数に比例
- エネルギーとの関係は見られない

### 荷電変換断面積 ( $\sigma_p$ )



構成原子数、エネルギーともに依存が見られない

### 3.3 高速クラスターイオン照射による2次イオン放出と高感度表面分析

産総研：平田浩一

原子力機構・高崎研：斎藤勇一、千葉敦也、山田圭介

原子力機構・先端基礎：高橋康之、鳴海一雅

#### 1. はじめに

クラスターイオンの物質への衝突では、試料表面の狭い領域に、同一クラスターを起源とする複数の原子が、同時にエネルギーを付与するため、試料表面に高密度でエネルギーを付与することが可能である。加えて、クラスターを構成する各原子による照射の影響範囲が重なる複雑な衝突現象のため、クラスターイオン照射効果（観測される効果の度合いがクラスター数に比例しない、あるいは、原子当たりの観測される効果の度合いが単原子イオン照射の場合と異なる）が観測されている。

例えば、同速度の単原子炭素イオンおよび炭素クラスターイオンを有機系高分子試料に照射した際に生じる2次イオンによる電流 ( $I_s$ ) を測定したところ、クラスターイオン照射では単原子イオン照射に比べて、入射原子1個当たりの  $I_s$  が増大することがわかった[1]。これは、同元素を同速度で照射した場合でも、入射原子当たりに生成される2次イオン量はクラスターイオン照射の場合の方が高いことを示している。2次イオンが多く生成することは、2次イオン質量分析への応用において有利な点の一つである。

入射エネルギーが 30 keV 程度までの低エネルギー領域のクラスターイオンを2イオン質量分析の1次イオンとして利用することは、 $C_{60}$  イオンを中心に近年広がりつつあるが、それ以上の入射エネルギーを持つクラスターイオンの利用は数少ない。ここでは、数十 keV 以上のクラスターイオン照射による2次イオン放出とその応用について報告する。また、2次イオン量の比較を行うために、直流入射イオンビーム電流 ( $I_0$ ) とその時の  $I_s$  の測定も併せて行った。

#### 2. 実験

クラスターイオン照射による2次イオン質量分析実験は、日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所のイオン照射実験施設 (TIARA) のタンデム加速器およびイオン注入器を用いて行った。パルス化されたビームを試料に照射し、試料から放出された2次イオンは、飛行時間型2次イオン質量分析器により分析を行った。

#### 3. 同速度の単原子およびクラスターイオン照射による2次イオン強度の比較 [2, 3]

前述のように、クラスターイオン照射とクラスターイオンと同元素からなる単原子イオンを同速度で有機系高分子試料に照射した場合、入射原子当たりに生成される2次イオン総量はクラスターイオン照射の場合の方が高いことがわかった。ここでは、表面が有機物汚染した単結晶 Si 試料の場合、同元素・同速度の単原子イオンとクラスターイオンで各2次イオン強度について報告する。

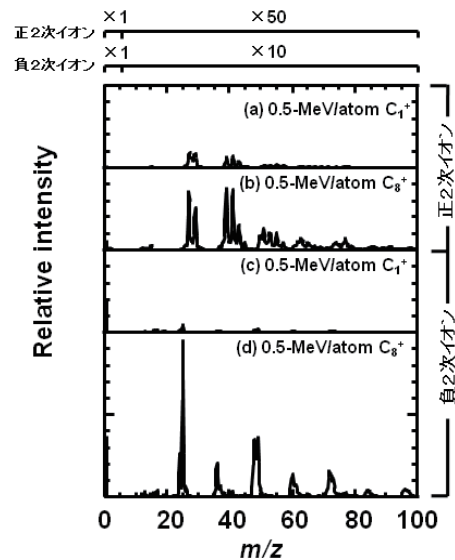


図1 表面が有機物汚染した Si 基板に、0.5MeV/atom の  $C_1^+$  単原子イオンおよび  $C_8^+$  クラスターイオンを照射した場合の正負2次イオンスペクトル。縦軸は、入射原子当たりに生成される2次イオン量に比例するように表示。

図1に、(a)  $C_1^+$  単原子イオン、(b)  $C_8^+$  クラスターイオンを、それぞれ 0.5MeV/atom の入射エネルギーで、表面が有機物汚染した単結晶 Si 試料に照射した場合の正2次イオン質量分析スペクトルを示す。実験は、TIARA のタンデム加速器を用いて行った。水素イオンの他、炭化水素 ( $C_pH_q^+$ ) 等の有機物汚染由来の2次イオンが観測された。縦軸の2次イオン強度は、入射原子当たりに生成される2次イオン量に比例するように表示しているため、 $C_8^+$  イオン照射の方が、 $C_1^+$  単原子イオン照射に比べて、有機物汚染由来正2次イオン強度が高いことがわかる。また、図1の(c)、(d)に示すように、有機物汚染由来の2次イオンは、正より負イ

オンで高い強度を示す。また、 $C_pH_q^-$ の強度は炭化水素中の炭素の数  $p$  が奇数時に比べて偶数時の方が高い強度を示す。

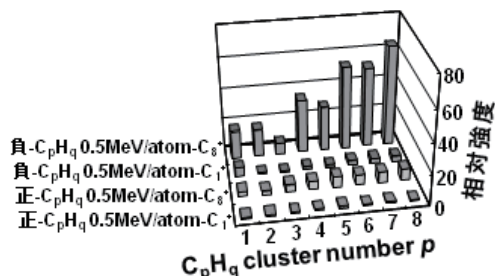


図2 炭化水素2次イオン $[C_pH_q^+, C_pH_q^-]$ 強度の炭化水素中の炭素数  $p$  依存性。縦軸は、各  $p$  数における  $C_1^+$ イオン照射時の正の炭化水素2次イオン ( $C_pH_q^+$ ) 強度を基準として、入射原子当たり生成される2次イオン量に比例するよう表示。

図1の各2次イオン強度を比較するために、図2に(a)~(d)のスペクトルにおける炭化水素2次イオン ( $C_pH_q^+$ および  $C_pH_q^-$ ) 強度の炭化水素中の炭素数  $p$  依存性を示す。図では、各  $p$  における、 $C_1^+$ 単原子イオン照射時の正2次イオン強度に対する相対強度で示してある。いずれの  $p$  においても、 $C_8^+$ イオンを用いて負2次イオンを測定した場合の強度が一番高く、相対強度が数十になるものもある。

このように、同じ元素を同じ速度で試料に照射しても、単原子イオンとして照射するより、クラスターイオンとして照射する方が、高い表面汚染由来の2次イオン強度を得ることができる。このため、クラスターイオンを1次イオンとして2次イオン質量分析を行うことで、わずかな量でデバイスの特性や歩留まりに大きな影響を与える半導体表面上の汚染物質を高感度で分析することができる。

#### 4. 中エネルギー領域の $C_{60}$ イオン照射による2次イオン強度の比較

2次イオン強度は、入射イオン速度にも大きく影響される。 $C_{60}$ イオン照射による2次イオン放出は、30 keV程度までの低エネルギー領域ではよく研究されているが、それ以上の数十 keV から数百 keV の領域での研究はほとんどない。ここでは、ポリアミノ酸試料への  $C_{60}$  イオン照射による2次イオン強度の  $C_{60}$  入射エネルギー依存性について報告する。

図3に、(a) 30 keV  $C_{60}^+$ 、(b) 120 keV  $C_{60}^+$ 、(c) 540 keV  $C_{60}^{2+}$ をポリチロシン薄膜に照射した場合の正2次イオン質量分析スペクトルを示す。縦軸

の2次イオン強度は、入射  $C_{60}$  当たり生成される2次イオン量に比例するよう表示している。 $m/z = 107$  および  $136$  のピークが、チロシンを測定した際に観測される特徴的な2次イオン、 $C_7H_7O$  と  $C_8H_{10}NO$  である。図3で、 $C_{60}$  の入射エネルギーが 30 keV→120 keV→540 keV と高くなるにつれて、チロシンを測定した際に特徴的に表れる  $m/z = 107$  と  $136$  の強度が高くなっていることがわかる。2次イオン質量分析における  $C_{60}$  イオンの利用は、ここ数年で次第に普及してきたが、その入射エネルギーは、30 keV程度までの低エネルギー領域である。ここで示すように、 $C_{60}$  の入射エネルギーを高くすることで、アミノ酸分析に必要な2次イオン強度を高めることが可能であり、高感度分析に有効であることがわかる。

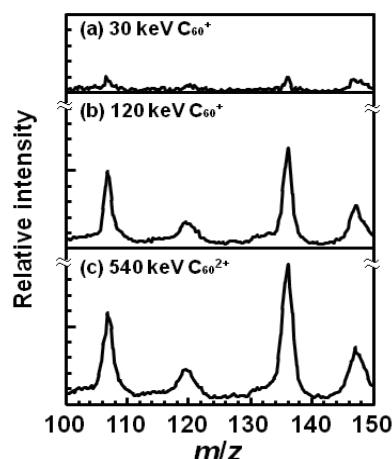


図3 ポリチロシン試料の正2次イオンスペクトル。縦軸は、入射  $C_{60}$  当たり生成される2次イオン量に比例するよう表示。

#### 5. まとめ

数十 keV 以上のクラスターイオン照射による2次イオン放出と高感度表面分析への応用について報告を行った。今後、クラスターイオンに特徴的な2次イオン放出現象をより効果的に分析に反映させるため、試料による効果の違い、照射条件の最適化等の検討を進める予定である。

#### References

- [1] K. Hirata, Y. Saitoh, K. Narumi, and Y. Kobayashi, Appl. Phys. Lett., 81 (2002) 3669.
- [2] K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, Y. Kobayashi, and Y. Ohara, Appl. Phys. Lett., 86 (2005) 044105.
- [3] K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, and K. Narumi, Appl. Phys. Express, 1 (2008) 047002.
- [4] K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, M. Adachi, K. Yamada, and K. Narumi, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 266 (2008) 2450.

## 高速クラスターイオン照射による2次イオン放出と 表面分析への応用

産業技術総合研究所  
計測標準研究部門

平田 浩一

本研究は、

斎藤勇一 氏	日本原子力研究開発機構	高崎量子応用研究所
千葉敦也 氏	日本原子力研究開発機構	高崎量子応用研究所
山田圭介 氏	日本原子力研究開発機構	高崎量子応用研究所
鳴海一雅 氏	日本原子力研究開発機構	先端基礎研究センター
高橋康之 氏	日本原子力研究開発機構	先端基礎研究センター
阿達正浩 氏	現:分子科学研究所	極端紫外光研究施設

の方々と共同で行われた研究です。

また、静電加速器オペレーターの皆様をはじめ、  
日本原子力研究開発機構の方々に、  
多大なご協力いただきました。  
ここで、深く感謝いたします。

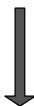
## Outline

- 0. クラスタライオン照射
  - 1. 2次イオン電流測定
  - 2. 2次イオン質量分析への応用
  - 3.  $C_{60}$  1次イオンの利用
- 今後の課題等

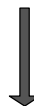
## クラスタライオン照射

クラスタライオン: 複数の原子からなる原子の集団をイオン化したもの

単原子イオン照射



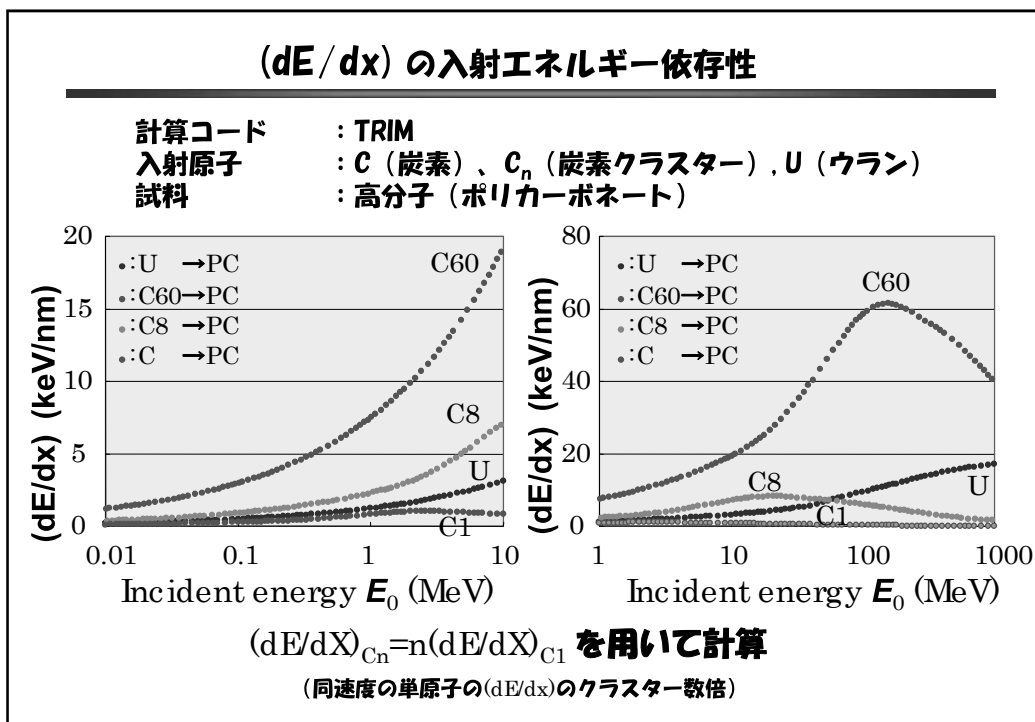
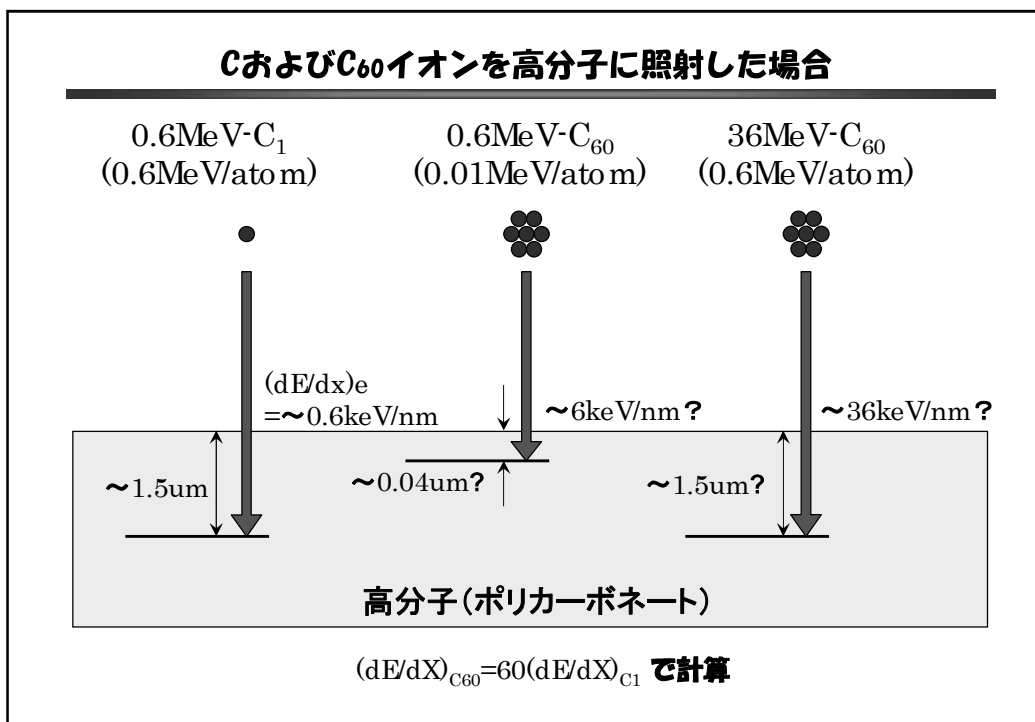
クラスタライオン照射



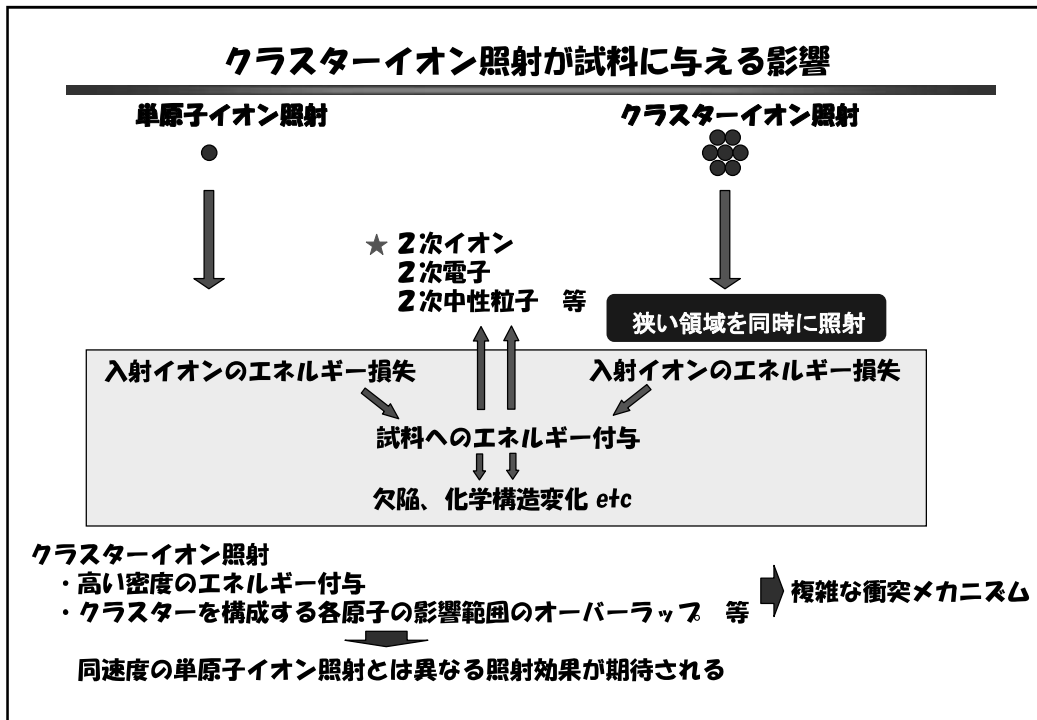
狭い領域を同時に照射



高密度でエネルギーを付与



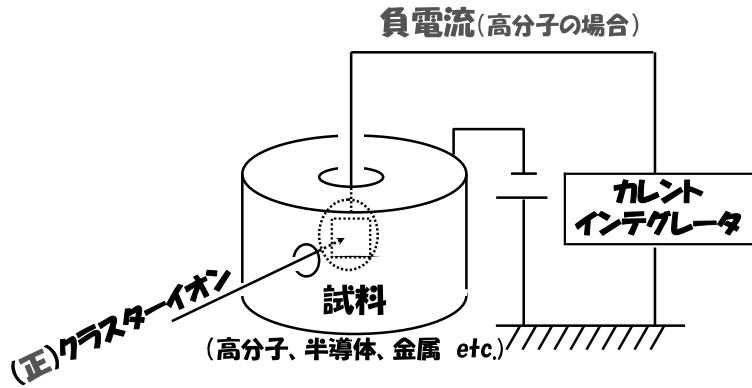




## 1. 2次イオン電流測定

## 照射量測定

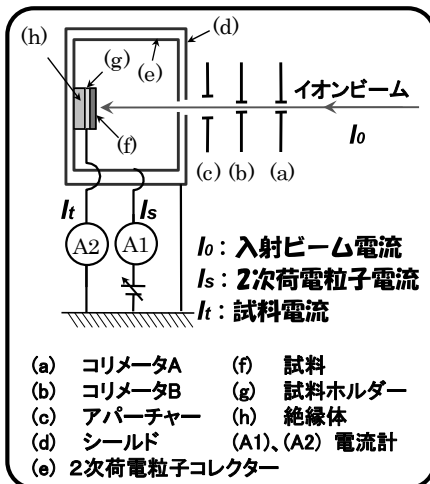
### 実験初期の頃



正のクラスターイオンを高分子材料に照射すると、負の試料電流が観測された。

高い正2次イオン量を示唆

## 試料電流・2次荷電粒子電流同時測定



試料 ←  $I_0$ : 入射ビーム電流  
 →  $I_s$ : 2次荷電粒子電流

0.5 MeV/atom  $C_1^+$ 、 $C_8^+$  → Polycarbonate(PC)

試料ホルダー電位 : グランド

2次荷電粒子コレクター電位 : -100 V

入射原子当たりの正2次イオン電流 :  $I_s/nI_0$

入射イオン当たりの正2次イオン電流 :  $I_s/I_0$

$I_s/nI_0$  →  $C_8^+$  は  $C_1^+$  の4倍程度

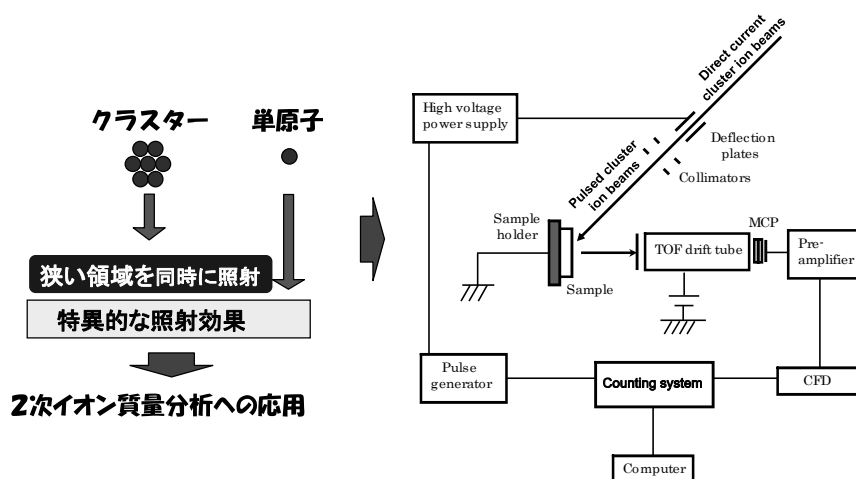
$I_s/I_0$  →  $C_8^+$  は  $C_1^+$  の30倍程度

- (a) コリメータA (f) 試料
- (b) コリメータB (g) 試料ホルダー
- (c) アパーチャー (h) 絶縁体
- (d) シールド (A1)、(A2) 電流計
- (e) 2次荷電粒子コレクター

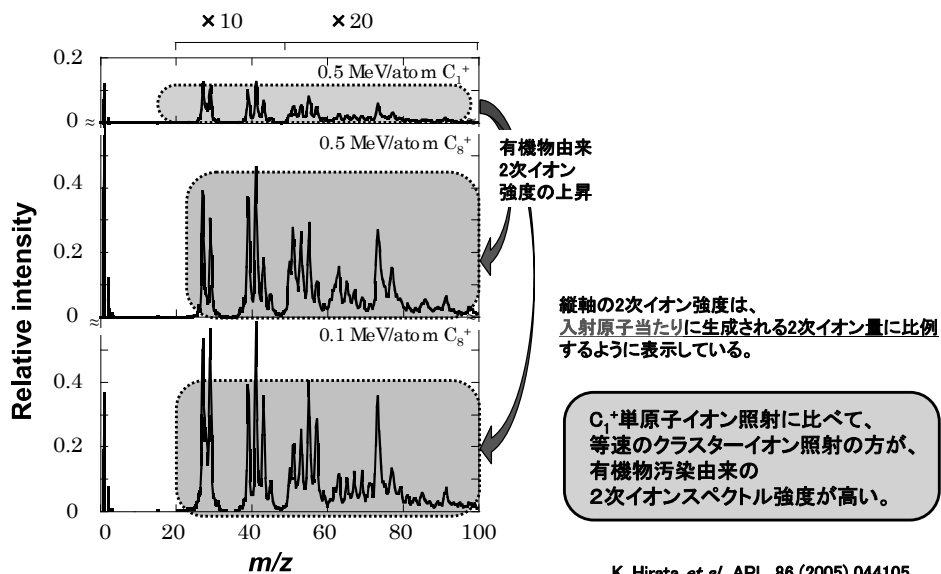
**ポイント** クラスターイオン照射では、  
 同速度・同種元素の単原子イオン照射に比べて、  
 入射原子当たり、入射イオン当たりの2次イオン電流が高い

## 2. 2次イオン質量分析への応用

### クラスターイオンを利用した2次イオン質量分析



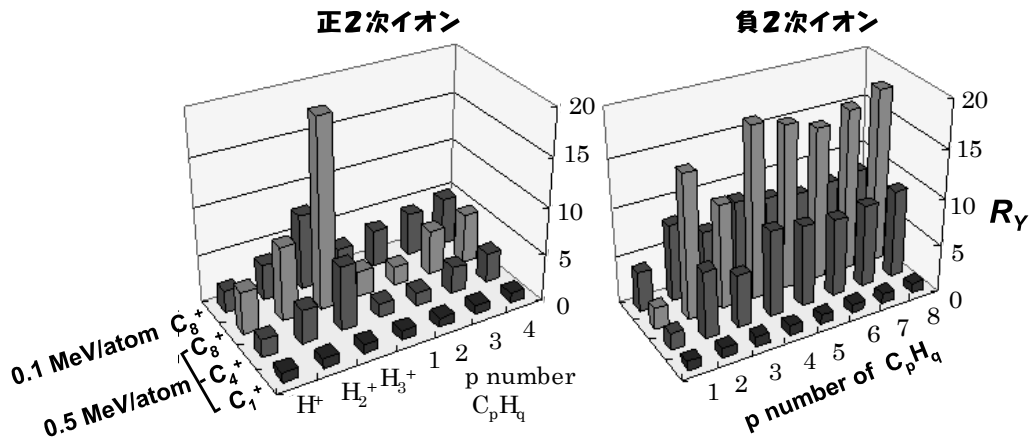
### Siウェハー上の有機物汚染分析(正2次イオン測定)



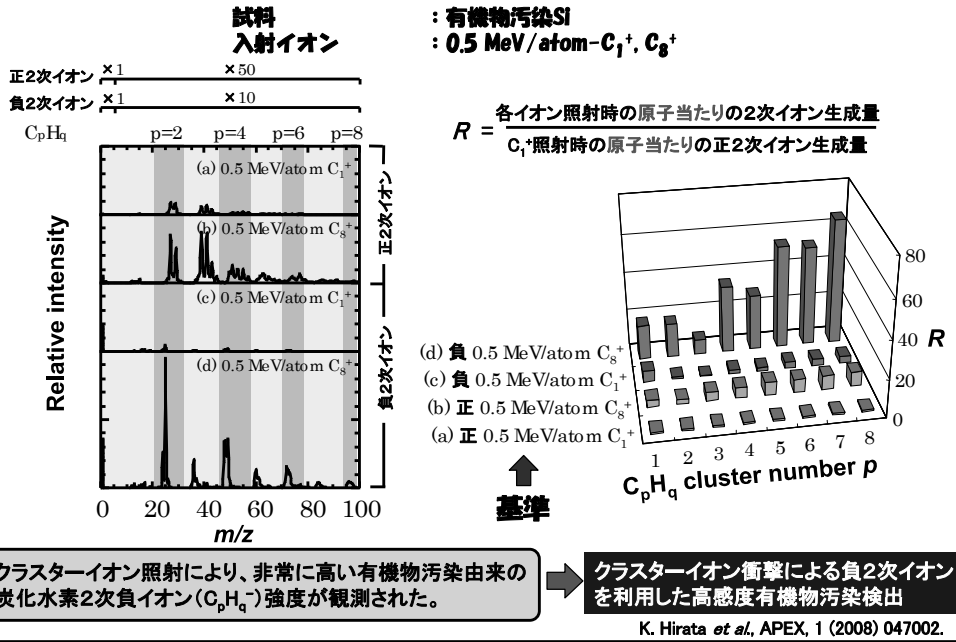
### Siウェハー上の有機物汚染分析 2次イオン強度(クラスター数依存性、入射エネルギー依存性)

- 0.5 MeV/atom  $C_1^+(n=1)$
- 0.5 MeV/atom  $C_4^+(n=4)$
- 0.5 MeV/atom  $C_8^+(n=8)$
- 0.1 MeV/atom  $C_8^+(n=8)$

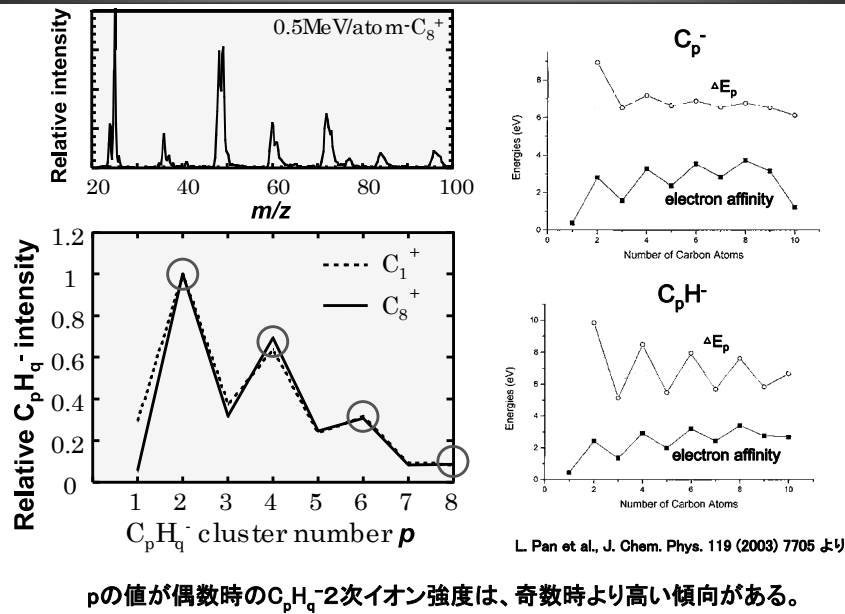
$$R_Y = \frac{\text{クラスターイオン照射時の原子当たり2次イオン生成量}}{\text{単原子イオン照射時の原子当たり2次イオン生成量}}$$



### Siウエハー上の有機物汚染分析(正負C<sub>p</sub>H<sub>q</sub>2次イオン強度比較)



### C<sub>p</sub>H<sub>q</sub>-2次イオン強度のp数依存性

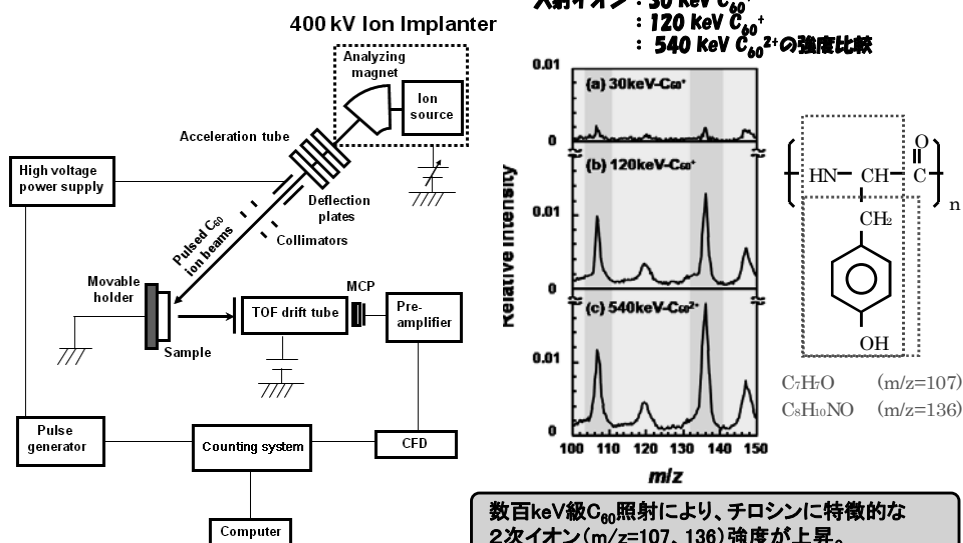


### 3. C<sub>60</sub> 1次イオンの利用

#### C<sub>60</sub> 1次イオンを用いた2次イオン質量分析装置の開発

入射イオン : C<sub>60</sub><sup>+</sup>, C<sub>60</sub><sup>2+</sup>  
 入射エネルギー : ~ 540 keV (+2価)

有機物試料測定例  
 試料 : チロシン  
 入射イオン : 30 keV C<sub>60</sub><sup>+</sup>  
 : 120 keV C<sub>60</sub><sup>+</sup>  
 : 540 keV C<sub>60</sub><sup>2+</sup>の強度比較



数百keV級C<sub>60</sub>照射により、チロシンに特徴的な2次イオン(m/z=107, 136)強度が上昇。

K. Hirata *et al.*, NIMB, 266 (2008) 2450.

## まとめ

---

- ・中～高エネルギークラスターイオンを1次イオンとして、2次イオン質量分析に應用することで、分析上有用な2次イオン強度を上昇させ、高感度分析を行うことができることを示した。

### 3.4 高速クラスターイオン衝突による標的からの荷電粒子・光放出過程と照射効果の研究

柴田裕実（京大・院工）、斎藤勇一、千葉敦也、阿達正浩、山田圭介、神谷富裕、横田渉、小嶋拓治（原子力機構・高崎研）、高橋康之、鳴海一雅（原子力機構・先端基礎）

#### 1. はじめに

高速（高エネルギー）クラスターイオンと物質との相互作用では個々の原子の集合体として線形的に振る舞うのではなく、個数以上、あるいは個数以下の非線形的な効果を与えることがこれまでの研究で分かっているが、そのメカニズムについては十分に理解されてはいない。

本研究ではクラスターイオンの衝突による二次イオン放出の収量や質量スペクトルの測定、あるいは光放出過程を通して、高速クラスターイオン照射の特徴を調べることを目的とする。

H18-19年度は直線飛行時間型（TOF）質量分析器を用いて炭素、アルミ、金のクラスターイオンと HOPG（Highly Oriented Pyrolytic Graphite: 高配向性熱分解炭素）標的との衝突で放出される正負二次イオンの収量の入射クラスターイオンのクラスターサイズやエネルギーに対する依存性の測定を行った。また、H20年度には炭素クラスターイオンとサファイア（ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ ）標的との衝突で放出される光の強度のクラスターサイズやエネルギーに対する依存性の測定を、時間分解マルチチャンネル分光器を用いて行ったので報告する。

#### 2. 二次イオン放出過程

##### 2.1 炭素クラスター衝突

本実験に用いたクラスターイオンは日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所 TIARA の 3MV タンデム静電加速器からのエネルギー 0.5 MeV/atom ( $\sim 42\text{keV/u}$ )  $\text{C}_1^+ \sim \text{C}_8^+$ 、1.0 MeV/atom ( $\sim 84\text{keV/u}$ )  $\text{C}_1^+ \sim \text{C}_6^+$ 、1.5 MeV/atom ( $\sim 126\text{keV/u}$ )  $\text{C}_1^+ \sim \text{C}_4^+$  イオンである。

核子当たりのイオンエネルギー（入射粒子の速度）を揃え、ビーム強度を十分にとる必要から、 $\text{C}_1$ 、 $\text{C}_2$ 、 $\text{C}_6$  イオンは  $\text{C}_8$  イオンがストリッパガスを通過する際に壊れてできるイオンを、 $\text{C}_4$  イオンはイオン源から直接得られるイオンを用いた。ビーム強度は  $\text{C}_8$  の時、直流ビームで数 10pA であった。また、ビームライン及び真空チャンバーはクラスターイオンが輸送中に分解しないよう超高真空（ $\sim 10^{-7}$  Pa）に保たれている。TOF スペクトルの計測はイオンビームをパルス化し、TAC（時間波高変換）を用いる方法により行われた。TOF 装置は直線型で引出し電極、ドリフトチューブ（約 50 cm）、加速電極、MCP（マルチチャンネルプレート）検出器から成る。板状標的からの二

次イオンはビームに対して  $45^\circ$  の方向に引き出された。インジェクター側に設置されたチョッパー装置によって幅 100~200 ns、間隔 8 kHz のパルスビームが作られた。TAC のスタート信号としてパルスビーム形成用パルス発生器の TTL 信号を用い、ストップ信号として MCP 検出器で発生したイオンの信号を用いた。二次イオンの信号は MCA（マルチチャンネル分析器）にて蓄積された。

標的試料には HOPG を用いた。HOPG 試料は層状に剥がすことができ新しい表面を測定に使えるので他の試料に比べて不純物の吸着が少ないと考えられる。それでも相当不純物（例えば、水、ナトリウムなど）が観測されるので、ECR イオン源からの 5 keV の Ar ビーム照射により表面のクリーニングを行った。10 分位の照射で著しく不純物が少なくなり、スペクトルの変化もなくなり、より大きな質量までの二次クラスターイオンが観測される。

Fig.1, 2 に実験で得られた結果の一例を示す。Fig.1 は HOPG に  $\text{C}_1^+$  イオンを衝突させた際に表面より放出された正負の二次イオンスペクトルを示す。Fig.2 は  $\text{C}_8^+$  クラスターイオンを衝突させた場合の正負イオンのスペクトルである。 $\text{C}_1^+$  イオンの場合は正負イオンのスペクトルは全体的にはそれほど変わらず大きなサイズの放出クラスターイオンは観測されていない。しかしながらスペクトルを詳しく見ると、正イオンの場合は  $\text{C}_2$  イオンを除き、炭素のみのクラスターは観測されず、 $\text{C}_n\text{H}_m$  の炭化水素のピークが見られる。一方、負イオンでは炭素のみのクラスターが大きなピークとして観測されている。 $\text{C}_8^+$  クラスターイオンの場合では正負イオン共に大きなサイズのクラスターイオンが観測され、負イオンでは  $\text{C}_{18}$  位まで、正イオンでは  $\text{C}_{21}$  位まで見えている。

Fig.3 に 0.5, 1.0 及び 1.5 MeV/atom の炭素クラスターイオンを HOPG に照射した際に放出された正負二次イオンに対する水素を除いた正イオンの全収量の  $\text{C}_1^+$  イオン照射における正イオン全収量に対する比を示す（ $\text{C}_1^+$  照射における正イオン放出の全収量をそれぞれ 1 とした）。各々のエネルギーにおける正負二次イオンスペクトルに相違はほとんど見られなかった。0.5 MeV/atom の場合以外は 2~3 点の測定であるが大まかな傾向は推測できよう。正イオンの図（左図）において、1.5 MeV/atom のデータ（一点鎖線）は 1.0 MeV/atom のデータにほぼ重なっている。



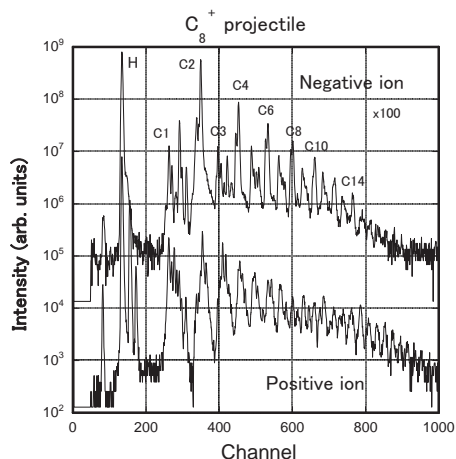


Fig.1. Positive secondary ion spectra emitted from HOPG target bombarded by  $C_8^+$  ions (linear scale).

図からわかるように3種の入射エネルギーについて比較してみると、エネルギーによらず正負イオンの収量は正の非線形性を示している。図中の Linear と表示されている曲線が線形関係（クラスターサイズに比例して収量が増加する）を示している。1.0 では2点、1.5MeV/atom の場合は3点のデータしかないのではっきりしたことはわからないが、エネルギーが大きくなるにつれ収量もクラスターサイズに対しほぼ指数的に増加していると思われる（図中の直線は指数関数を表す）。正負イオンの収量は1.0と1.5MeV/atom の場合では大きな違いはないようである。すべての入射エネルギーについて、負イオンの収量は正イオンの数倍から数10倍になっていて、この傾向はエネルギーに関わらず同様である。この理由は未だ明らかではない。

二次イオン放出現象においては、イオンの速度が Bohr 速度以下の低速領域では、核的衝突が支配的でクラスターイオンでは負の非線形性が、また Bohr 速度以上の高速領域では電子的衝突が支配的で正の非線形性が表れることが理論的に知られており、今回の実験では核子当たり約 42 keV (0.5MeV/atom) の場合から 126keV (1.5 MeV/atom) の場合と Bohr 速度より大きく、阻止能で考えるとエネルギーが大きくなるにつれ、阻止能も大きくなり 126 keV 付近では最大値付近になっていると考えられるので、定性的には実験結果を説明できる。

2.2 金、アルミクラスター衝突

次に 0.675MeV/atom ( $\sim 25\text{keV/u}$ )の  $Al_1^+ \sim Al_4^+$  及び 1.67MeV/atom ( $\sim 8.5\text{keV/u}$ )の  $Au^+ \sim Au_3^+$ イオンの HOPG への衝突実験を報告する。同種のクラスターイオンで核子当たりのエネルギーを広範囲に変えることができることが望ましいのであるが、加速器

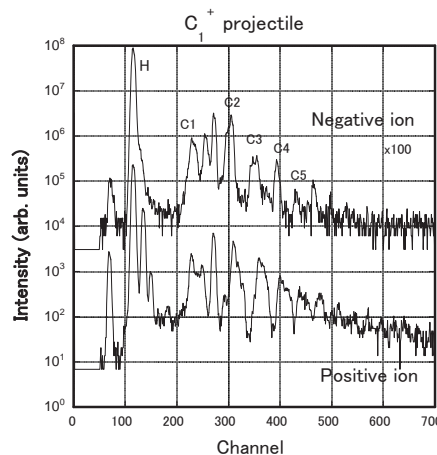


Fig.2. Negative secondary ion spectra emitted from HOPG target bombarded by  $C_8^+$  ions (linear scale).

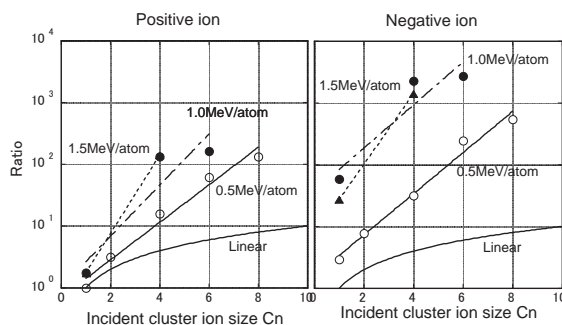


Fig.3 The ratio of yields of positive (left) and negative (right) secondary ions emitted from HOPG target bombarded with 0.5, 1.0 and 1.5 MeV/atom carbon incident ions. The yield of positive secondary ions bombarded by  $C_1^+$  ion is unity.

の制約上不可能なので、加速可能な粒子を変えて核子当たりのエネルギーを変更し比較した。

用いた核子当たりのエネルギーは Bohr 速度 ( $\sim 2.2 \times 10^6 \text{ m/s}$ ,  $\sim 25\text{KeV/u}$ ) とより低い速度を選び、放出正負二次イオンの全収量（水素を除く）の入射クラスターサイズに対する依存性を比較した。Al や Au クラスターイオン照射に対して放出二次イオン質量スペクトルはそれほど変わらず、あまり大きなサイズの放出クラスターイオンは観測されていない。この点が C クラスターの場合と大きく違う点である。 Fig.4 は Au 及び Al クラスターイオン照射で HOPG から放出された二次イオンで水素を除いた正負イオンの全収量の  $Au_1^+$  及び  $Al_1^+$ イオン照射における正イオン全収量に対する比をプロットしたものである ( $Au_1^+$ 及び  $Al_1^+$ 照射における正イオン放出の全収量を 1 とした)。図中の Linear は収量がクラスターの個数に比例している場合である。

図からわかるように Au の場合、正負イオンの収量はクラスターサイズに余り依存せず、負の非線形性を示している。一方、Al の場合はクラスターサイズに対し、ほぼ指数的に増加し、正の非線

形性を示している。両者の場合、負イオンの収量は正イオンの数 10 倍になっていて、この傾向は C クラスターイオン照射の場合と同様である。

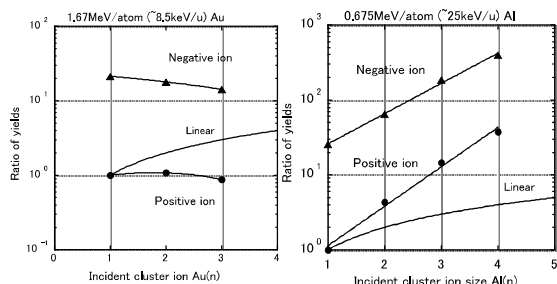


Fig.4 The ratio of yields of positive (●) and negative secondary ions (▲) emitted from HOPG target bombarded with aluminum (right) and gold (left) incident ions. The yield of positive secondary ions bombarded by Al<sub>1</sub><sup>+</sup> or Au<sub>1</sub><sup>+</sup> ion is unity, respectively.

二次イオン放出現象においては、イオンの速度が Bohr 速度以下の低速領域では、核的衝突が支配的でクラスターイオンでは負の非線形性が、また Bohr 速度以上の高速領域では電子的衝突が支配的で正の非線形性が表れることが理論的に知られており、今回の実験では定性的には理論と同じ結果になっている。

### 3. 発光過程

本研究に用いたクラスターイオンはエネルギー 0.5–1.0 MeV/atom (42–84 keV/u) の C<sub>1</sub><sup>+</sup>–C<sub>8</sub><sup>+</sup> イオンで、照射野は 3mmφ、ビーム電流は C<sub>1</sub><sup>+</sup> で 2.5nA、C<sub>8</sub><sup>+</sup> で 40pA 程度である。発光測定は時間分解マルチチャンネル分光器 (Hamamatsu Photonics PMA11) を用い、クラスターイオンは試料に対し 45 度方向より入射した。試料にはイオンビームの発光モニターとして良く用いられ、発光過程が比較的良くわかっているサファイア (α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を選んだ。二次イオン測定では表面の不純物除去のため、ECR イオン源からの Ar ビーム照射により表面のクリーニングを行ったが、発光測定では何も行っていない。

4MeV C<sub>8</sub><sup>+</sup> クラスターイオンをサファイアに照射したときの発光スペクトルを Fig.5 に示す。発光の測定範囲は 250–800nm で、この範囲でのスペクトルの特徴は 326nm 及び 411nm に発光が見られる。これら以外の発光は検出されていない。326nm は F<sup>+</sup> 中心からの発光で、発光強度はイオンビーム照射と同時に次第に増加し、最大値に達してからゆっくりと減少する。411nm は F 中心からの発光で、これもビーム照射と同時に次第に増加し、最大値に達してから、F<sup>+</sup> 中心よりも早く減少していく (Fig.6)。

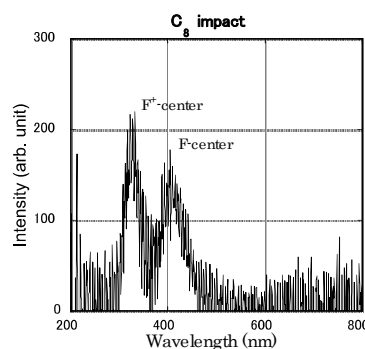


Fig.5 Typical luminescence spectrum from sapphire target bombarded with 4MeV C<sub>8</sub><sup>+</sup> cluster ion.

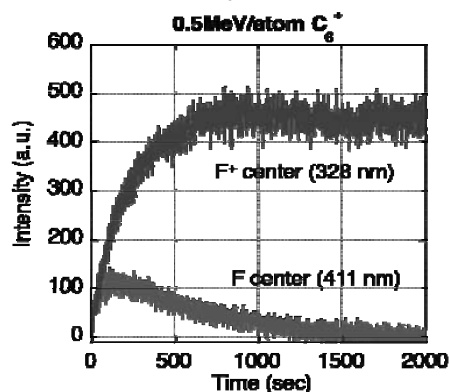


Fig.2 The time dependent luminescence from F<sup>+</sup> and F centers of sapphire target bombarded by C<sub>6</sub><sup>+</sup> projectile.

Fig.7 は F<sup>+</sup> 中心の発光量についてクラスターイオンサイズの依存性を調べたものである。発光量には時間依存性があるので、本実験では発光量が最大に達する点での発光収量を比較することにした。0.5 MeV/atom C<sub>1</sub><sup>+</sup> イオン照射下の F<sup>+</sup> 中心の発光収量を 1 とし、0.5 および 1.0 MeV/atom クラスターイオンの発光収量に対する比を図に示した。図から発光量の比はクラスターサイズに比例して増加しており、その比例係数は約 0.9 であった。クラスターサイズに対応して線形的に増加した場合、比例係数は 1 なので、この場合はサブリニアな関係になっている。つまり F<sup>+</sup> 中心を形成する照射欠陥はクラスターサイズに比例して増加するが、クラスターの個数倍よりは若干少ない量で最大値に達する。

エネルギー依存性については Fig.7 に示すように、1.0 MeV/atom の場合、0.5 MeV/atom の場合に比べ、光量は約 1.5 倍大きく、クラスターサイズに対する依存性は同じような傾向となった。

クラスター効果を記述する量として、n 個のクラスターイオンの反応収量 I<sub>n</sub> を 1 個当たりの反応収量を n 倍したものとの比をとったもの (I<sub>n</sub> = I(n) / nI(1)) がよく使われる。例えば阻止能 (S = -dE/dx) では R<sub>n</sub> = S(n) / nS(1) と表される。

図中の Theory というのは(1)式のように、クラスターを一つの融合した原子と考えると阻止能の  $R_n$  を計算したもので、標的の種類に依存せず入射クラスターの種類と速度にのみ依存する。図には  $nR_n$  の値を図示した。ここで、(1)式中の  $n$  はクラスターの数、 $Z$  は原子番号、 $v$  はクラスターの速度、 $v_0$  は Bohr 速度である。

$$R_n = n \left( \frac{1 - \exp(-v/(nZ)^{2/3} v_0)}{1 - \exp(-v/Z^{2/3} v_0)} \right)^2 \quad (1)$$

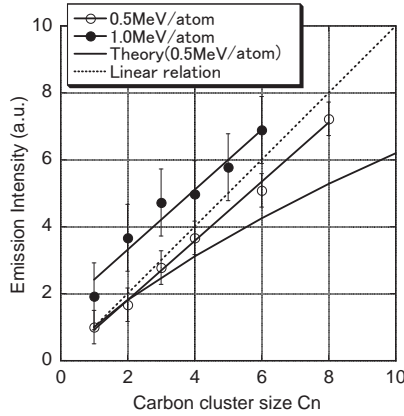


Fig.7 The ratios of yields of luminescence from  $F^+$  center of sapphire target bombarded by  $C_1^+ \sim C_8^+$  projectiles. The yields of luminescence are normalized to that from  $C_1^+$  ion bombardment.

図から分かるように阻止能の理論値は 0.5 MeV/atom エネルギーではサブリニアな関係を示し、クラスターサイズに対し線形的な依存性はない。実験値は阻止能の理論値にかなり近い関係を示している、照射損傷による発光と阻止能とは良い相関があると考えられる。

#### 4. 結論

クラスターサイズ依存性に関して、二次イオン放出の収量の比較では、著しい非線形効果が表れ、特に電子励起効果が主に発現するエネルギー領域では正の非線形効果が見られた。一方、発光測定では発光収量は線形に近いが負の非線形性が見られ、融合原子の阻止能のクラスターサイズ依存性と線形的な値との間にあることがわかった。

#### Reference

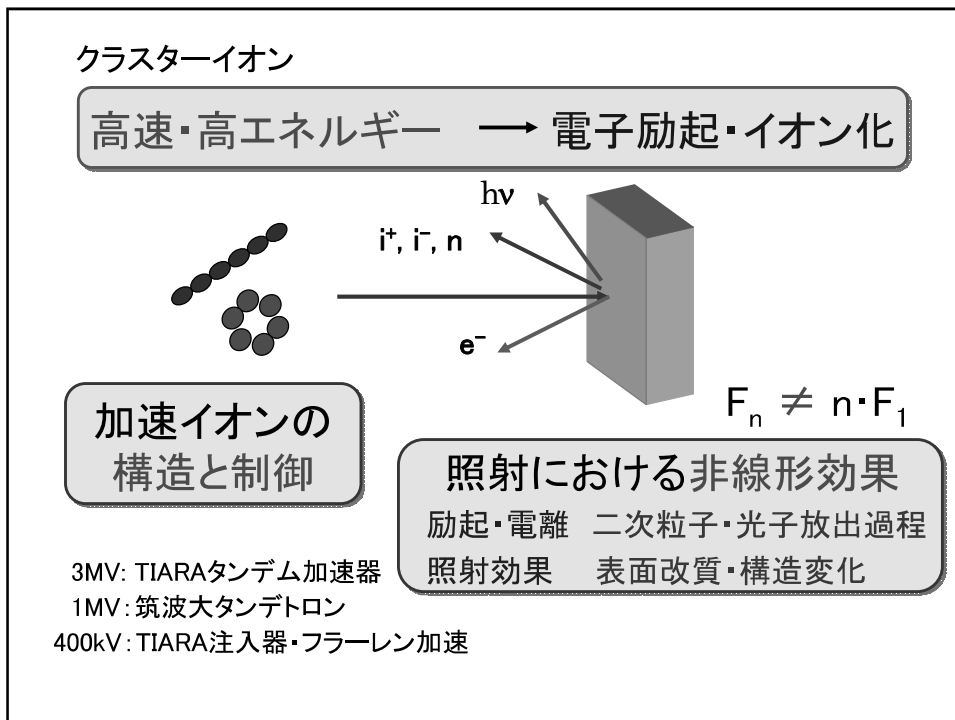
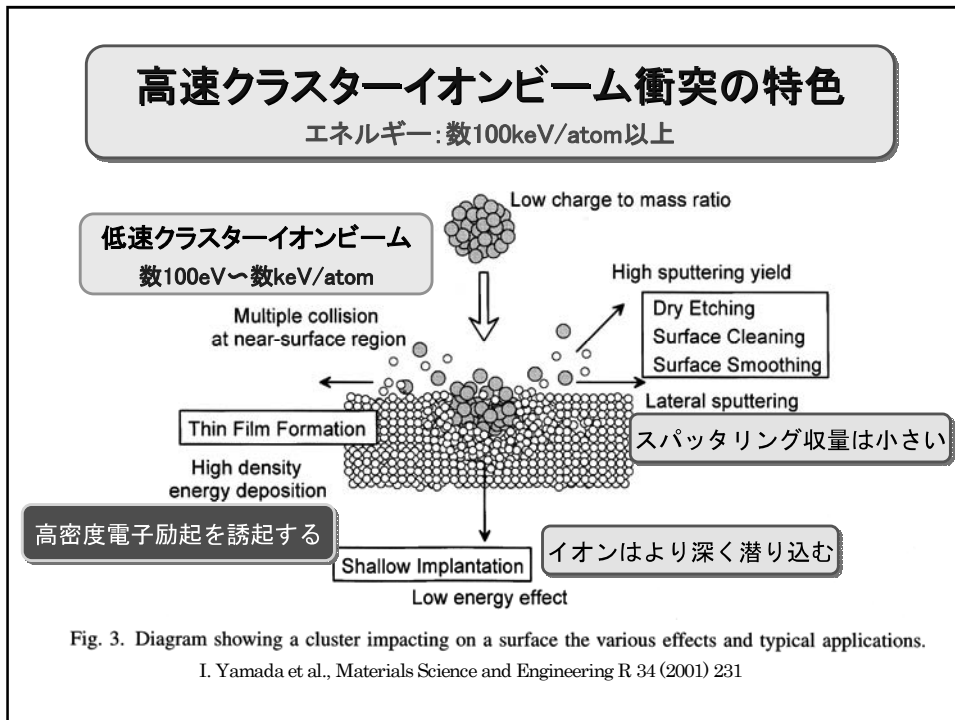
- [1] P.Sigmund et al., Nucl. Instrum. Meth. **B112** (1996) 1.
- [2] Y.Aoki, N.T.My, S.Yamamoto, H.Naramoto, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 114 (1996) 276.

## 高速クラスターイオン照射 によるアルミナからの発光測定

京大院工	柴田裕実
原子力機構高崎研	斉藤勇一、千葉敦也
	山田圭介
原子力機構先端研	高橋康之、鳴海一雅

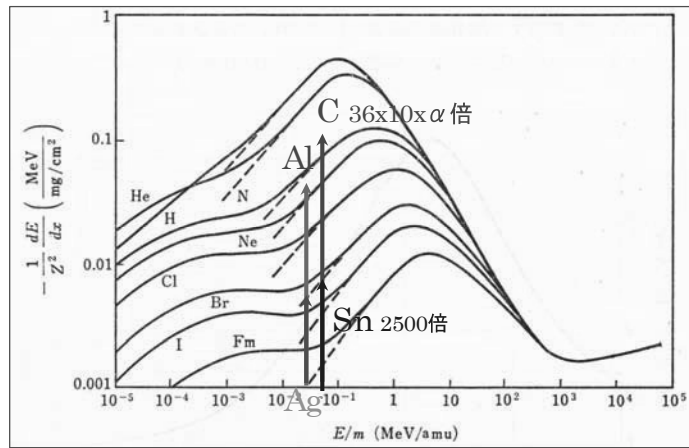
### クラスターイオンの加速

- ・クラスターとは  
原子数:  $2 \sim 10^4 \sim 5$   
巨大分子・ナノ粒子・超微粒子
- ・高速とは  
 $25 \text{keV/u}$  (ボア速度  $2.2 \times 10^6 \text{m/s}$ ) 以上  
電子励起を誘起する
- ・超重イオンの代わり?  
 ${}_{92}^{238}\text{U} < {}_{79}^{197}\text{Au}_2, \text{C}_{60}$



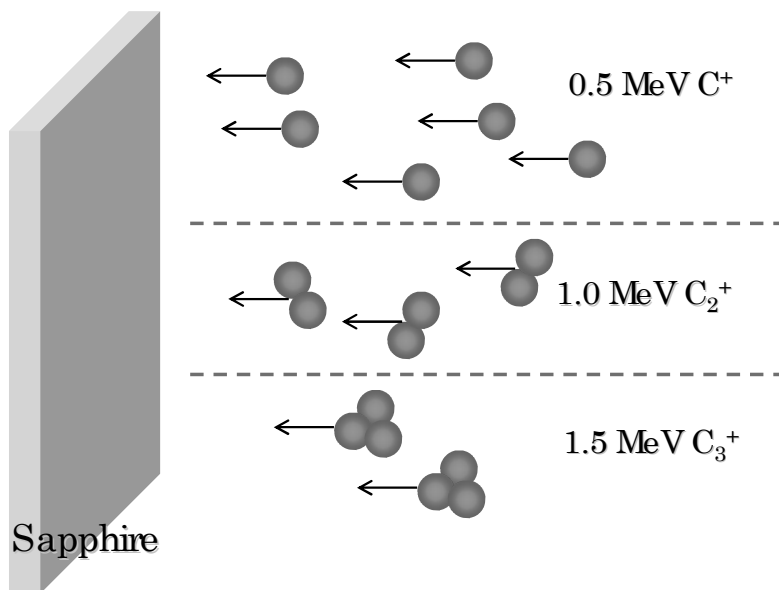
同じ質量と速度をもつ重イオンと同じ照射効果を与えるか？

${}_{13}^{27}\text{Al}$ : 0.50MeV/atom (38 keV/u)    2.0MeV  ${}_{13}^{27}\text{Al}_4$  は 2.0MeV  ${}_{47}^{108}\text{Ag}$  に相当  
 ${}_{6}^{12}\text{C}$ : 0.50MeV/atom (48 keV/u)    5.0MeV  ${}_{6}^{12}\text{C}_{10}$  は 5.0MeV  ${}_{50}^{119}\text{Sn}$  に相当

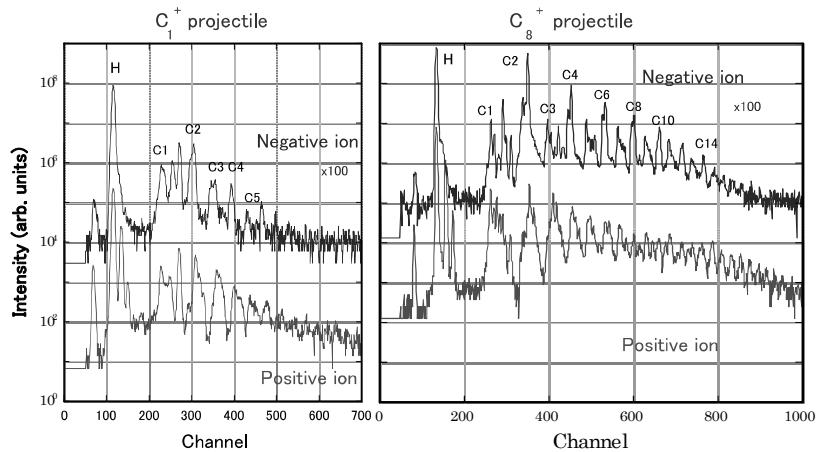


アルミ中でのイオンのエネルギー損失

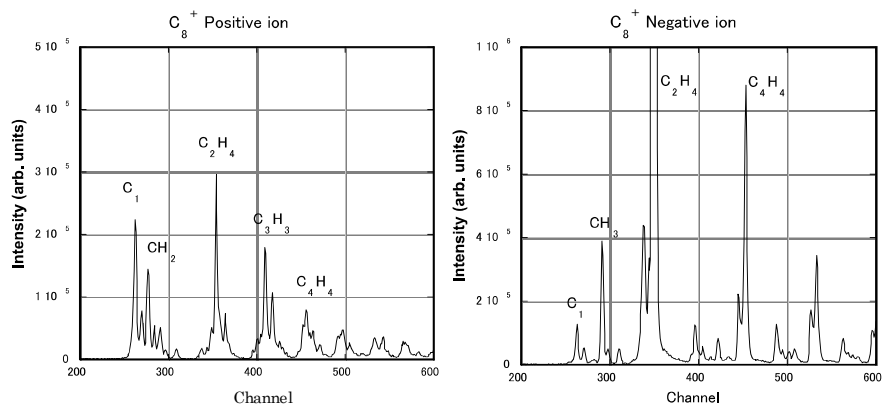
単原子イオンと同じ速度のクラスターイオンでは照射効果が異なるのか？



(これまでの研究) 高速クラスターイオン衝突による  
グラファイトからの二次イオン放出

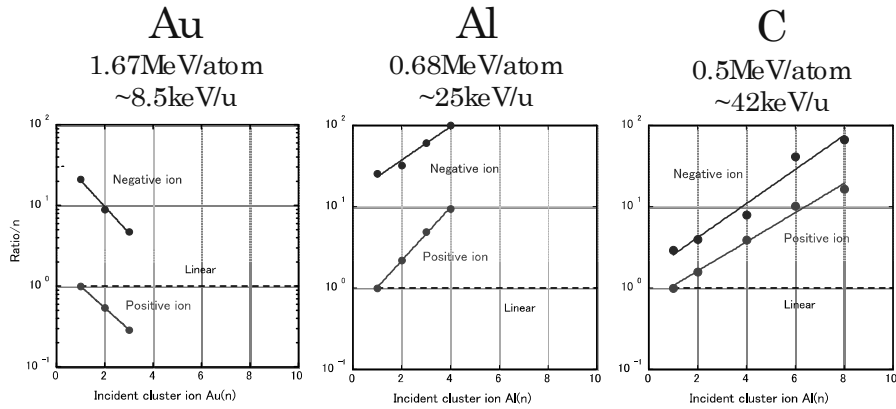


$C_1^+$ イオン及び $C_8^+$ クラスターイオン-炭素衝突により  
放出された正負の二次イオンスペクトル



$C_8^+$ クラスターイオン-HOPG衝突によって生成された  
二次正負イオンのスペクトル(リニアスケール)

水素を除く放出二次イオンの全収量



(C<sub>1</sub><sup>+</sup>, Al<sub>1</sub><sup>+</sup>, Au<sub>1</sub><sup>+</sup>照射で正イオン放出の全収量を1とした)

正の非線形性 Al 25 keV/u、C 48 keV/u → 電子的  
 負の非線形性 Au 8.5 keV/u → 核的

**実験**

クラスターイオン 0.5 MeV/atom C<sup>+</sup>~C<sub>8</sub><sup>+</sup>

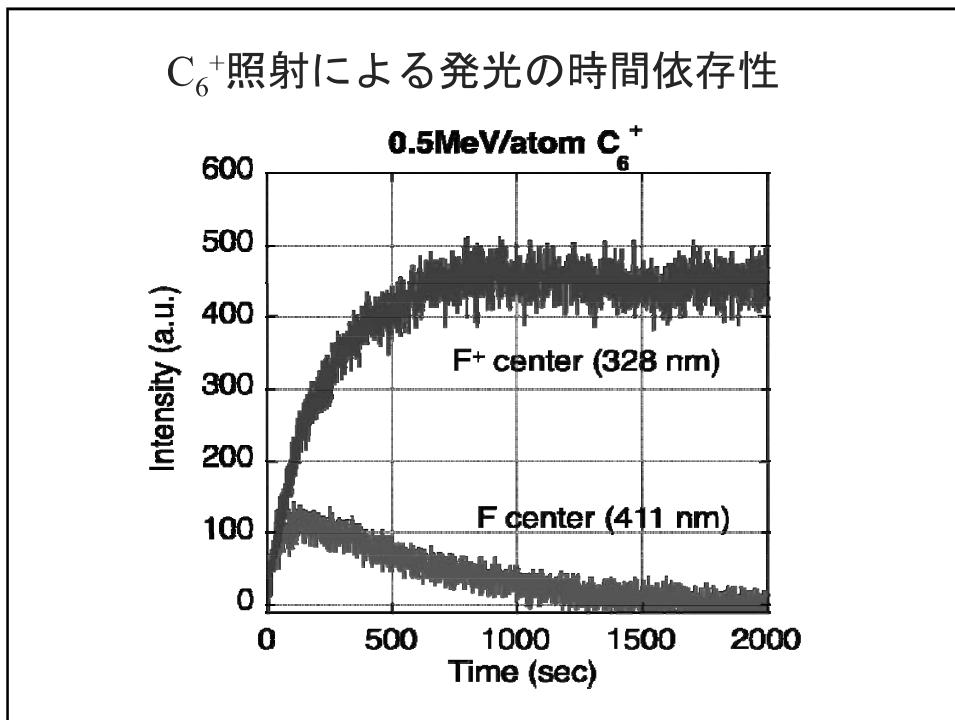
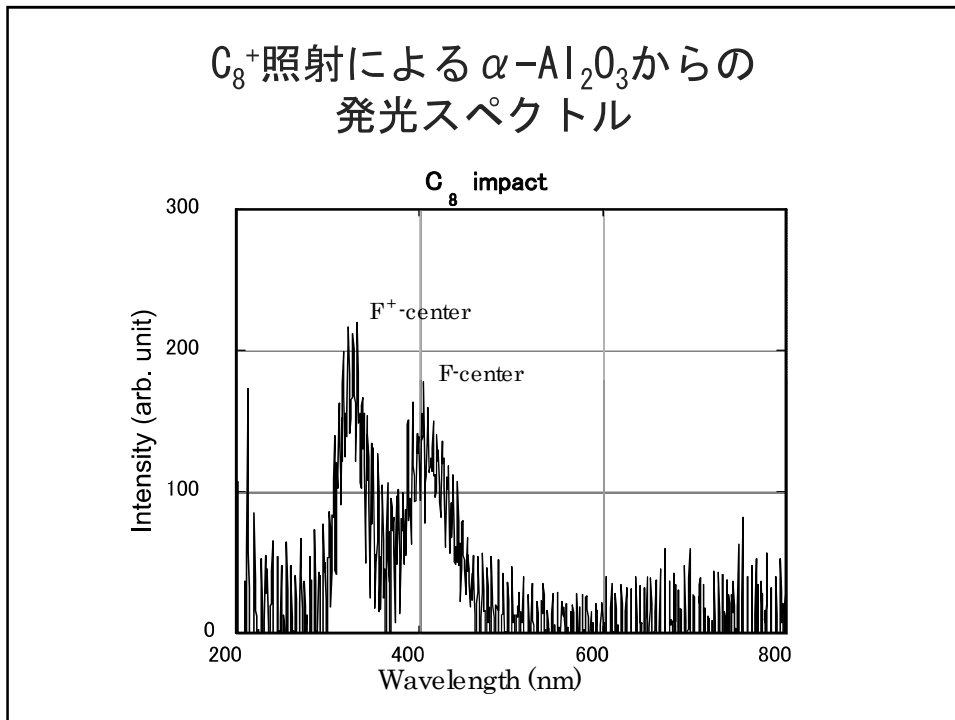
電流 2.5 nA (C1), 40 pA (C8) 3 mm φ

標的 α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> サファイア

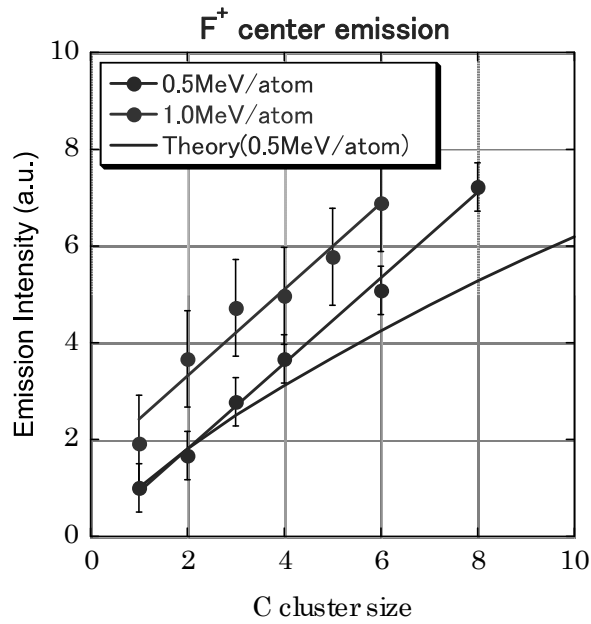
発光測定 浜松ホトニクス PMA-11

波長範囲 250~900 nm





発光強度の炭素クラスターイオンサイズ依存性



$$R_n = \frac{S(n)}{nS(1)} \quad S : \text{stopping power}$$

United atom limit

$$R_n = n \left( \frac{1 - \exp\left(-v / (nZ)^{2/3} v_0\right)}{1 - \exp\left(-v / Z^{2/3} v_0\right)} \right)^2$$

$v_0$  : Bohr velocity

P. Sigmund et al., Nucl. Instrum. Meth. B 112 (1996) 1

## まとめ

- ・ クラスターイオンの照射効果を調べるのに、二次イオン放出に比べ表面の効果が少ない発光現象を用いた
- ・ 0.5MeV/atom炭素クラスターイオンのサファイアへの照射において、最大発光量を比較すると負の非線形性が見られた
- ・ 最大発光量へ達するまでの照射量についてもクラスターイオン照射の効果が見られた

連携重点研究 (H18-20)  
高速クラスターイオンビームによる物質との相互作用  
及び照射効果の解明

京都大学 柴田裕実  
日本原子力研究開発機構 神谷富裕・横田 渉・小嶋 拓治

## 加速イオンの構造と制御

「クラスターイオン照射の制御に関する研究」  
斎藤（原子力機構高崎研）グループ

## 照射における非線形効果

電離現象

「高速クラスターイオン衝突による標的からの二次荷電  
粒子放出過程と照射効果の研究」柴田（京大）グループ

## 照射効果

「クラスターイオンの照射効果に関する研究」  
平田(産総研)グループ

「カーボンクラスターイオンによる非線形照射効果の研究」  
岩瀬(大阪府大)グループ

「C<sub>60</sub>等のクラスターイオンの衝撃効果を利用した炭素同素体  
変換」  
鳴海(原子力機構先端セ)グループ

「高速クラスターイオン照射による高分子の高密度電子  
励起状態の分光と可視化」(関(阪大)グループ)

### 3.5 Si 表面に対する 10-100 keV 領域 C<sub>60</sub> イオンの衝撃効果

原子力機構・先端基礎：鳴海一雅、楢本 洋、高橋康之  
 原子力機構・高崎研：山田圭介、千葉敦也、斎藤勇一、阿達正浩  
 原子力機構・先端基礎、京都大・院エネルギー科学：前田佳均

#### 1. はじめに

フラーレン (C<sub>60</sub>) イオンを固体に照射した場合、直径 1 nm 程度の領域に 60 個の炭素原子がほぼ同時に入射するため、単原子イオン照射の場合では実現できないほど高密度に固体にエネルギーを与えることができる。例えば、高エネルギーの例ではあるが、単原子イオンの照射では形成されない Si 中でのイオントラックが、30 MeV C<sub>60</sub> イオンの照射では形成されることが報告されている [1]。入射 C<sub>60</sub> イオンのエネルギーが 10-100 keV 程度の場合には、原子当たりのエネルギーが 1 keV 程度になるため、高エネルギーの場合とは異なり、表面から数 nm 程度の領域だけが照射によって影響を受けると考えられる。従って、数(nm)<sup>3</sup>程度の非常に狭い領域に集中してエネルギーが付与されるため、このエネルギー領域の C<sub>60</sub> イオン照射では、単原子イオン照射の場合には実現不可能な照射効果を極表面にもたらすことが想定される。

一方、このエネルギー領域での C<sub>60</sub> イオン衝撃のもう一つの大きな特徴は表面に局在する強いスパッタリング効果である。これは上述のように飛程が非常に浅い領域に限定されることと、多原子クラスターによるスパッタリングに特有の非線形効果の 2 つに起因する。特に、高分子材料等を標的にした場合には、単原子イオンを入射粒子に用いる場合に比べて、標的試料に結果として残る損傷が小さく、また、分子が壊れずにスパッタされることが明らかになり、最近、数 10 keV 程度の C<sub>60</sub> イオン衝撃を利用した高分子材料、生体材料の 2 次イオン質量分析の研究が盛んに行われている [2]。これら応用研究のベースとなる C<sub>60</sub> イオン衝撃によるスパッタリング効果は、シミュレーションによる研究が先行しているものの、構造感がない物質を用いたスパッタリング収量等の基礎データが不足しており、その理解は必ずしも十分とは言えない。

我々は、特に C<sub>60</sub> イオン衝撃によるスパッタリング現象の理解を目指して、固体標的に対する C<sub>60</sub> イオン衝撃効果に関する研究を行ってきた。本報告では、TIARA のイオン注入装置で可能な 10-540 keV のエネルギー範囲の C<sub>60</sub> イオンを Si 表面に照射し、C<sub>60</sub> イオンによる Si のスパッタリング収量、Si 表面の炭素堆積過程、表面近傍の結晶性、結合状態を評価した結果を報告する。

#### 2. 実験

標的試料には Si(100)ウェハーを用いた。スパッタリング収量の評価については、400 keV イオン注入装置からの 200 keV Ar<sup>+</sup>イオンを 5×10<sup>15</sup>/cm<sup>2</sup>照射し、あらかじめ表面に非晶質層 (厚さ約 360 nm) を形成した。その後 20-120 keV C<sub>60</sub><sup>+</sup>、200-540 keV C<sub>60</sub><sup>2+</sup>イオンを照射した。照射後、2 MeV <sup>4</sup>He<sup>+</sup>イオンを用いたラザフォード後方散乱(RBS)/チャネリング法により、C<sub>60</sub> イオン照射前後の非晶質層の厚さの変化を測定した。この厚さの変化と照射量から、C<sub>60</sub> イオン 1 個当たりの Si のスパッタリング収量を求めた。

分解堆積する可能性のある炭素の分析を行うため、RCA 洗浄法で表面の脱脂・水素終端処理をした Si 単結晶を標的に用いた。この試料に、10、50 keV C<sub>60</sub><sup>+</sup>、400 keV C<sub>60</sub><sup>2+</sup>イオンを照射した。照射後の試料は、1.2 MeV D<sup>+</sup>イオンを用い、<sup>12</sup>C(d, p)<sup>13</sup>C 核反応を利用して表面近傍の炭素量を非破壊・高感度に評価した。

C<sub>60</sub> イオン照射による試料表面近傍の結晶性の乱れは、2 MeV <sup>4</sup>He<sup>+</sup>イオンを用いた RBS/チャネリング法によって評価した。また、ラマン分光法を用いて表面近傍の結合状態を評価した。

C<sub>60</sub> イオンは全て 400 keV イオン注入装置からのもので、ビーム電流は 10 nA のオーダーで、照射面積は約 8×8 mm<sup>2</sup>、照射量は 10<sup>11</sup>-10<sup>15</sup> C<sub>60</sub>/cm<sup>2</sup> の範囲で選択した。照射時の真空度は 1×10<sup>-7</sup> Torr 程度だった。また、RBS 法及び核反応法による炭素量の評価には、それぞれシングルエンド加速器からの <sup>4</sup>He<sup>+</sup>イオン、D<sup>+</sup>イオンを用いた。

#### 3. 結果と考察

##### 3-1. スパッタリング収量

核的衝突が支配的である 20-540 keV C<sub>60</sub> イオンによる Si のスパッタリング収量を測定し、Sigmund の理論から計算した等速の単原子 C イオンによるスパッタリング収量との比較を行った。

図 1 に C<sub>60</sub> イオンのエネルギーに対する C<sub>60</sub> イオン 1 個当たりの Si のスパッタリング収量を示す。誤差棒は、Si 非晶質層の厚さの変化を評価する際の誤差を表す。イオン注入装置の仕様上、200 keV 以上の C<sub>60</sub> イオン照射は 2 価のイオンを用いたが、得られたスパッタリング収量は入射イオンの電荷によらない。スパッタリング収量は 100 keV 近辺

で最大値をとり、この時約 600 程度にまで達する。これは C 原子 1 個あたりに換算すると 1.67 keV の時スパッタリング収量が約 10 に相当する。

得られた結果を評価するために、同じ速度領域の単原子 C イオンによるスパッタリング収量との比較を行った。ただし、該当する実験データが存在しないため、Sigmund による線型衝突カスケード理論[3]に SRIM2008[4]で求めた核的阻止能の値を適用し、単原子 C イオンによるスパッタリング収量を計算した。結果を実線で図 1 に示す。スパッタリング収量は、4 keV の時 C 原子 1 個当たり約 0.9 となり、C<sub>60</sub> イオンに換算すると 240 keV で約 50 程度となる。これらの結果から、C<sub>60</sub> イオンの場合は単原子 C イオンに比べてスパッタリング収量のピークが低速側にシフトすることがわかる。同様の結果は Au クラスターによる Au のスパッタリングについても観測されていて[5]、クラスター誘起スパッタリングで共通の傾向だと考えられる。一方、スパッタリング収量は、C 原子 1 個当たりで比較すると約 10 倍、即ち C<sub>60</sub> 全体では約 600 倍となり、構成原子数に対して顕著な非線形性を示すことが明らかになった。

### 3-2. 表面の炭素堆積

10、50、400 keV C<sub>60</sub> イオンを照射した Si 表面の炭素堆積量を核反応法で評価した。図 2 は C<sub>60</sub> イオンを照射した Si 表面における炭素濃度 (<sup>12</sup>C/cm<sup>2</sup>) の照射量依存性を示す。<sup>12</sup>C の濃度は Kashy らによる核反応断面積を使って評価し[6]、

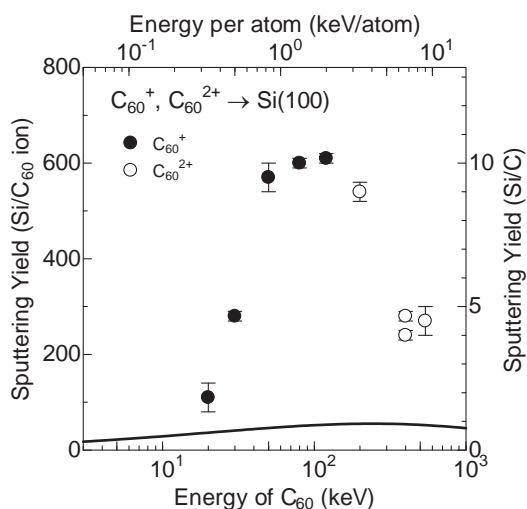


図 1 C<sub>60</sub> イオンによる Si のスパッタリング収量のエネルギー依存性。実線は、Sigmund の理論に基づく単原子 C イオンによるスパッタリング収量の計算値。下側の横軸は入射 C<sub>60</sub> イオンのエネルギーを、上側の横軸は C 原子 1 個あたりに換算したエネルギーをそれぞれ表す。また、左側の縦軸は C<sub>60</sub> イオン当たりのスパッタリング収量を、右側の縦軸は C 原子 1 個あたりに換算したスパッタリング収量をそれぞれ表す。

<sup>13</sup>C の寄与は無視した。実線は、入射した C<sub>60</sub> イオンに由来する炭素原子が全て表面に堆積されると仮定した場合の炭素濃度を表す。測定結果は、10<sup>14</sup> C<sub>60</sub>/cm<sup>2</sup> 程度まではこの量より多く、さらに照射量が増えると飽和する傾向を示し、飽和量は C<sub>60</sub> イオンのエネルギーに依存する。

この結果を説明するために、C<sub>60</sub> イオン 1 個の衝撃で表面の炭素濃度がどのように変化するかを考える。C<sub>60</sub> イオンの照射量を  $\phi$  (/cm<sup>2</sup>)、表面の炭素原子濃度を  $N$  (/cm<sup>2</sup>) とすると、 $N$  の変化は以下のレート方程式によって記述される。

$$\frac{dN}{d\phi} = 60 - 60B(E) - \frac{N}{N_c} Y(E) + \frac{N_a}{N_c} A(E), \quad (1)$$

ここで、 $B(E)$  は入射した C<sub>60</sub> イオン中の炭素原子が後方散乱する確率、 $N_c$  (/cm<sup>2</sup>) は基準となる炭素原子濃度、 $Y(E)$  は炭素原子に対するスパッタリング収量、 $N_a$  (/cm<sup>2</sup>) は表面に吸着した有機物に由来する炭素原子の濃度、 $A(E)$  は C<sub>60</sub> イオンの衝撃によって吸着有機分子中の炭素原子が反跳注入される確率、 $E$  は入射 C<sub>60</sub> イオンのエネルギーを表す。

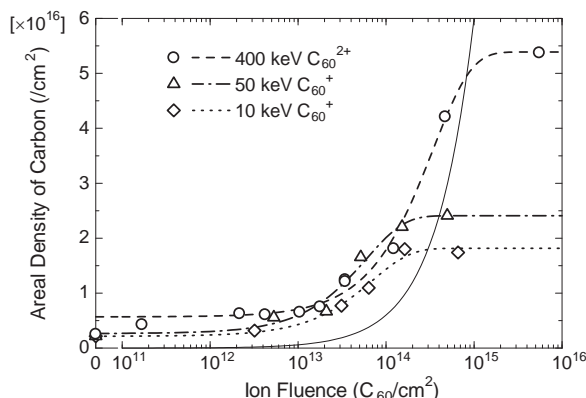


図 2 10、50、400 keV C<sub>60</sub> イオンを照射した Si 表面に堆積した炭素量の照射量依存。実線は、入射した C<sub>60</sub> イオンに由来する炭素原子が全て表面に堆積した場合の炭素濃度を表す。破線、一点鎖線、点線はそれぞれ(1)式でフィットした結果を表す。

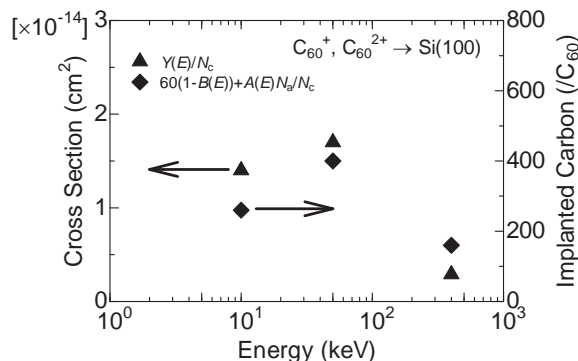


図 3 (1)式でフィットする際に得られた炭素に対するスパッタリング断面積と C<sub>60</sub> イオン 1 個の衝撃によって注入される炭素原子数。

(1)式において、炭素原子濃度は  $C_{60}$  イオンに由来する炭素原子の堆積と表面吸着炭素原子の反跳注入、及びそれらのスパッタリングとの競合過程によって決定される。図2に、(1)式で実験結果をフィットした結果を示すが、炭素原子濃度の照射量依存性をよく再現し、上記の仮定が正しいことを示している。フィットの際にはスパッタリング断面積  $Y/N_c$  と  $C_{60}$  イオン衝撃によって注入される炭素原子の数  $60(1-B) + N_a A/N_c$  が独立変数となるが、得られた結果を図3に示す。いずれも 50 keV 近辺にピークを持つことを示唆している。

3-3. 表面層の乱れ

10 keV  $C_{60}^+$  を照射した Si(100) 表面近傍の結晶性の乱れを、チャネリング法を併用した RBS 法によって評価した。図4に表面ピーク(主たる寄与は表面近傍の損傷に起因)の積分値と照射量との関係を示す。ここで表面ピークの積分値は表面近傍の結晶性の乱れの指標になり、積分値が大きいほど乱れた層が厚くなることを意味する。図より、照射量が  $10^{13} C_{60}/cm^2$  の前半では照射量とともに結晶性の乱れた層が厚くなっていくが、 $10^{13} C_{60}/cm^2$  の後半から飽和していることがわかる。ただし、ランダムレベルには達していない。この結果は、照射によって表面近傍に結晶性の乱れが導入されるが、それと同時に結晶性の乱れた層がスパッタリングで除去され、両者の競合により照射影響層の厚さが決定されると考えると、うまく説明できる。

3-4. 照射影響層のラマン分光評価

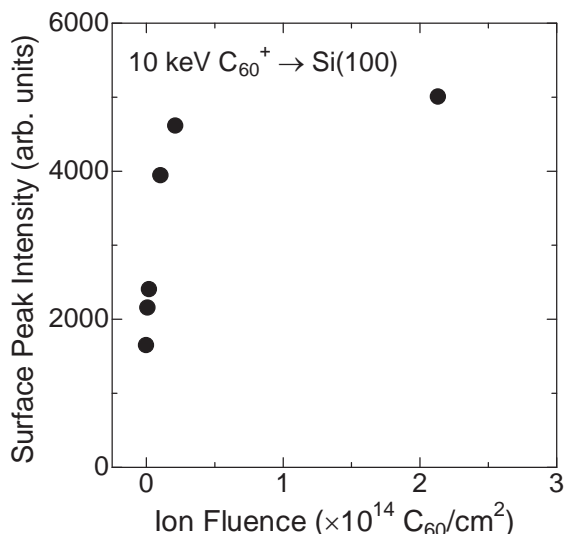


図4 10 keV  $C_{60}^+$  を照射した Si(100) 基板における表面ピーク積分強度の照射量依存。Si<100> 軸に平行に 2 MeV  $He^+$  を入射した場合の RBS スペクトル中の表面ピークの収量を積分した。

20 keV  $C_{60}^+$  イオンを照射した Si(100) 表面をラマン分光法で評価した。励起光としては 266 nm、364 nm の紫外光を用いた。観測されたラマンスペクトルは、照射量の増加とともに  $520 cm^{-1}$  における Si のラマンピークが低波数側へのシフトを示し、また、 $480 cm^{-1}$  に非晶質 Si に由来するピークが出現した。 $520 cm^{-1}$  のピークのシフトは、Si の結晶子のサイズに依存する。シフト量から見積もった Si 結晶子のサイズを照射量の関数として図5にプロットした。照射量が少ない領域 ( $\sim 10^{11} C_{60}/cm^2$ ) で、急激に結晶子のサイズが小さくなるが、 $10^{12} C_{60}/cm^2$  位の照射量では nm 程度のオーダーでゆっくり変化している。励起光に用いた紫外光の深さ方向の感度はそれぞれ 3 nm (266 nm)、5 nm (364 nm) 程度であることから、照射によって影響を受ける領域は表面から数 nm 程度と考えられ、また、その領域で非晶質 Si とナノ結晶 Si が混在しているものと結論できる。この結果は、 $C_{60}$  イオンの照射においては非晶質化と再結晶化過程が競合していることを示唆する。

4. まとめ

10-540 keV の  $C_{60}$  イオンを Si 表面に照射し、Si のスパッタリング収量、Si 表面の炭素堆積過程、表面近傍の結晶性、結合状態を評価した。核的阻止能が支配的なこのエネルギー領域においては、スパッタリング収量は 100 keV 近辺で最大値を取り、非常に顕著な非線形性を示す。 $C_{60}$  イオン照射による Si 表面への炭素原子の堆積量は、その照射量依存性を解析した結果、 $C_{60}$  イオンに由来する炭素原子の堆積と表面吸着炭素原子の反跳注入、及

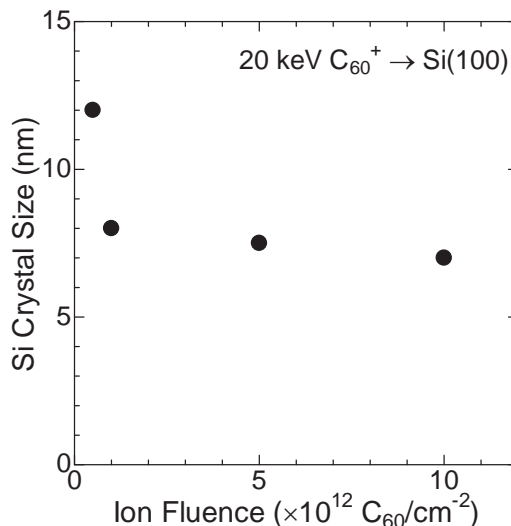


図5 20 keV  $C_{60}^+$  を照射した場合の、Si のラマンピーク ( $520 cm^{-1}$ ) のシフト量から見積もった Si 微結晶のサイズと照射量の関係。励起光の波長は 266 nm。

びそれらのスパッタリングとの競合過程によって決定されることが明らかになった。また、照射による表面近傍の結晶性の乱れ、それと同時に起こるスパッタリング、この両者の競合過程によって $C_{60}$ イオン照射による表面近傍の照射影響層の厚さが決定されることも明らかになった。これらの結果は、 $C_{60}$ イオンに特有の大きなスパッタリング収量が、これらの現象に深く関わっていることを示す。一方で、照射影響層においては照射による非晶質化だけではなく、同時に再結晶化が起こっているという、単原子イオンの照射では起こりえないことを示唆する結果が得られた。これは $C_{60}$ イオン照射の特徴である高密度エネルギー付与によるものと考えられる。

#### References

- [1] B. Canut *et al.*, Nucl. Instrum. Methods B, **146** (1998) 296.
- [2] For example, N. Winograd, Anal. Chem. **77** (2005) 142A.
- [3] P. Sigmund, Phys. Rev. **184** (1969) 383.
- [4] J. F. Ziegler, SRIM version 2008, <<http://www.srim.org>> (2008).
- [5] H. H. Andersen *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 5433.
- [6] E. Kashy *et al.*, Phys. Rev. **117** (1960) 1289.



# イオンビーム解析法による低エネルギー C<sub>60</sub> イオンのスパッタリング収量の評価

日本原子力研究開発機構  
 先端基礎研究センター  
 鳴海一雅、榎本洋、高橋康之、前田佳均  
 高崎量子応用研究所  
 斎藤勇一、山田圭介、千葉敦也、阿達正浩

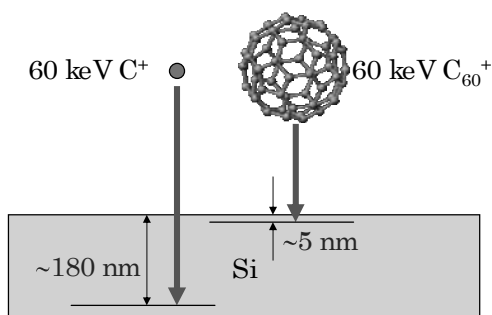
## Introduction

10-100 keV 領域での C<sub>60</sub>  
 イオン衝撃の特徴

- ・ 高スパッタリング収量
- ・ 短い飛程



高効率・無損傷スパッタへの適用  
 高分子材料 } 質量分析・表面分析  
 生体材料 }



C<sub>60</sub> イオン衝撃によるスパッタリング現象の理解は不十分

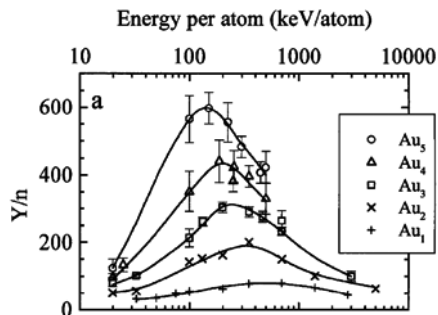
- ✓ スパッタリング収量
  - ✓ 表面堆積炭素量
  - ✓ 照射による損傷
- 10-100 keV 領域での  
 基礎データが必要

## Sputtering by Cluster Ions (Previous Works)

### $Au_n \rightarrow Au (n \leq 5)$

H.H. Andersen et al., PRL 80 (1998) 5433.

- 20 ~ 5000 keV/atom:  $S_n$  が支配的
- スパッタリング収量:
  - $n$  に比例しない (非線形性)
  - $n = 5$  のとき ~3000
- エネルギー依存性:
  - $n = 1$ :  $S_n$  のピークに一致
  - $n \rightarrow$  大: 低エネルギー側にシフト



### $C_{60}$ の場合

- 10 keV 領域でスパッタリング収量の増大を観測、非線形性は？
  - ex. 同じエネルギーの  $Ga^+$  との比較
- $S_n$  のピーク周辺のデータがない

## Objective

$C_{60}$  イオン衝撃によるスパッタリング現象の理解



スパッタリング収量のエネルギー依存性の評価

本研究:

- ✓  $S_n$  が支配的な領域: 20-400 keV ← TIARAで加速可能
- ✓ 標的は Si ← 一般的かつ応用上重要、試料の準備が容易
- ✓ 単原子イオンの場合との比較 ← Sigmund の理論による
  - 非線形性は？
  - $S_n$  との関係は？

## Experimental

### 標的試料:

- Si(100): RCA洗浄にて脱脂、水素終端処理
- 200 keV Ar<sup>+</sup> を  $5 \times 10^{15} / \text{cm}^2$  照射し、非晶質層を形成

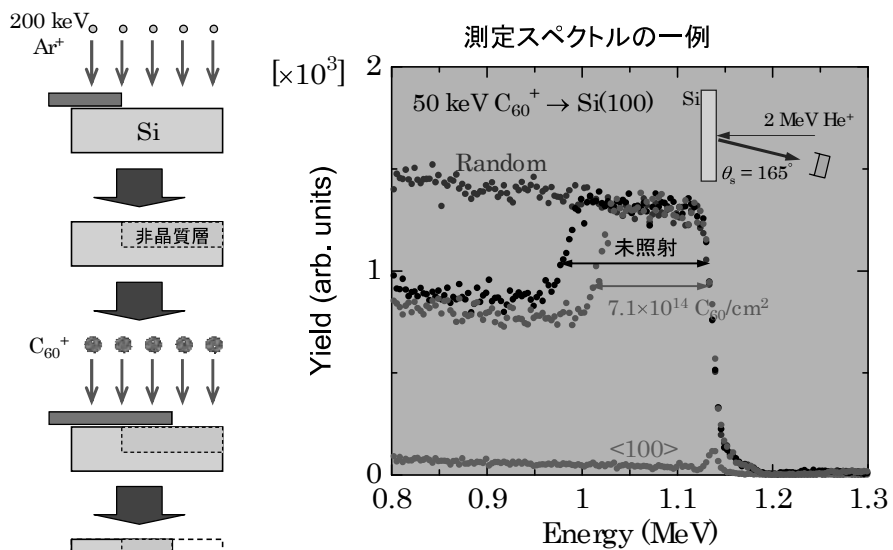
### C<sub>60</sub> イオン照射: TIARA の 400 kV イオン注入装置を利用

- 20-80 keV C<sub>60</sub><sup>+</sup>, 200-400 keV C<sub>60</sub><sup>2+</sup>
- ビーム電流: 数10 nA
- 照射面積: 8×8 mm<sup>2</sup> (スキャン) } 照射量:  $10^{14} \sim 10^{15} \text{ C}_{60} / \text{cm}^2$
- 照射時の真空度:  $\sim 1 \times 10^{-7} \text{ Torr}$

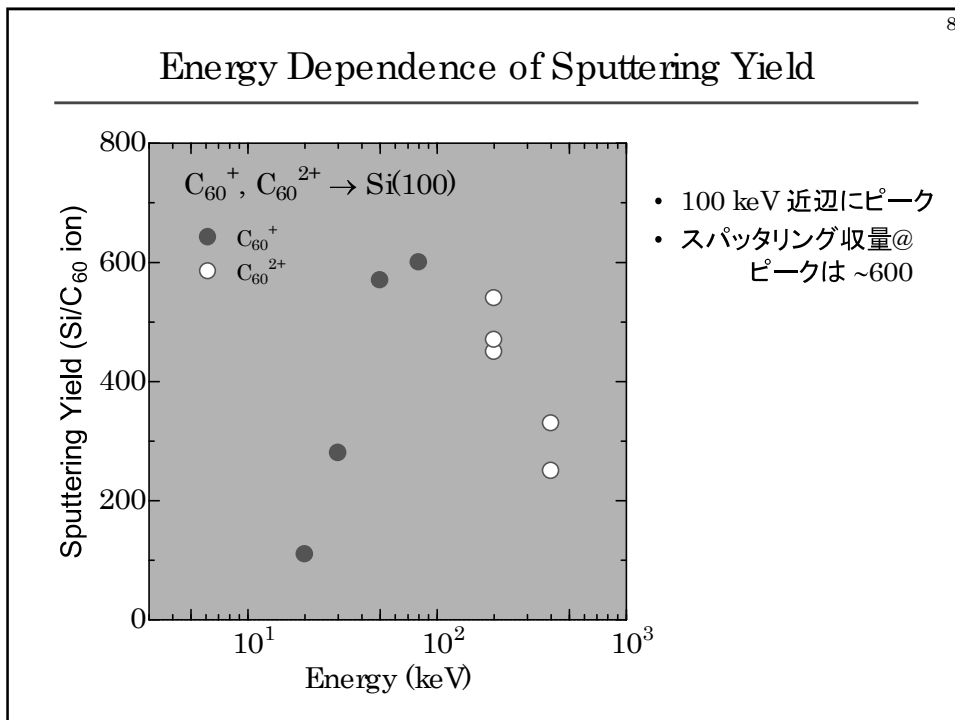
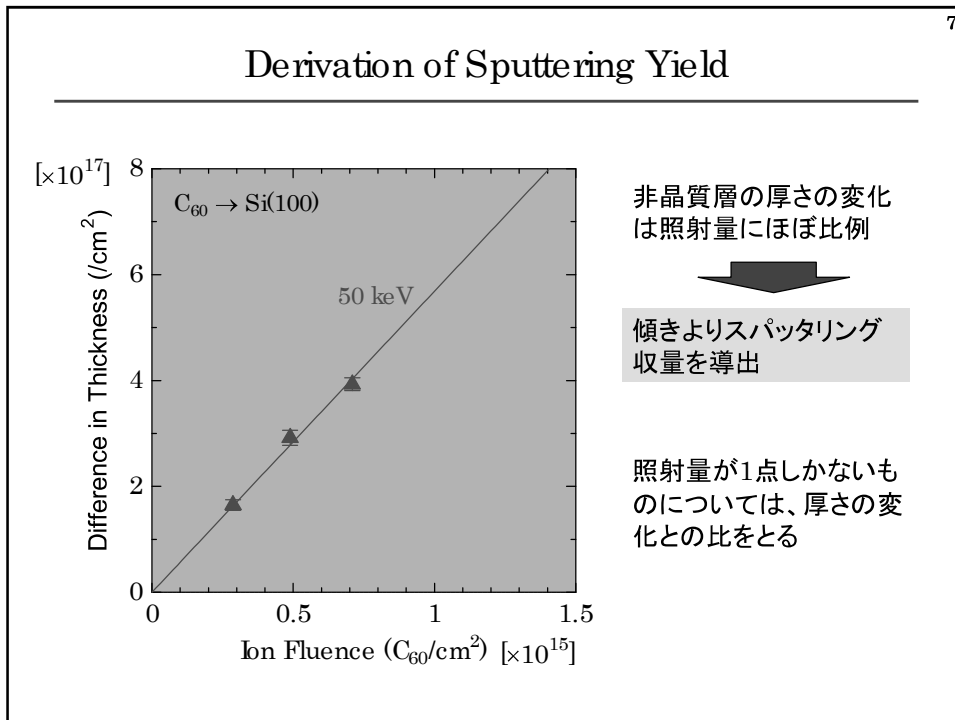
### スパッタリング収量の評価:

- ラザフォード後方散乱 (RBS)/チャネリング法、2 MeV <sup>4</sup>He<sup>+</sup> ( $\theta_s = 165^\circ$ )
- 非晶質層の厚さの変化を測定

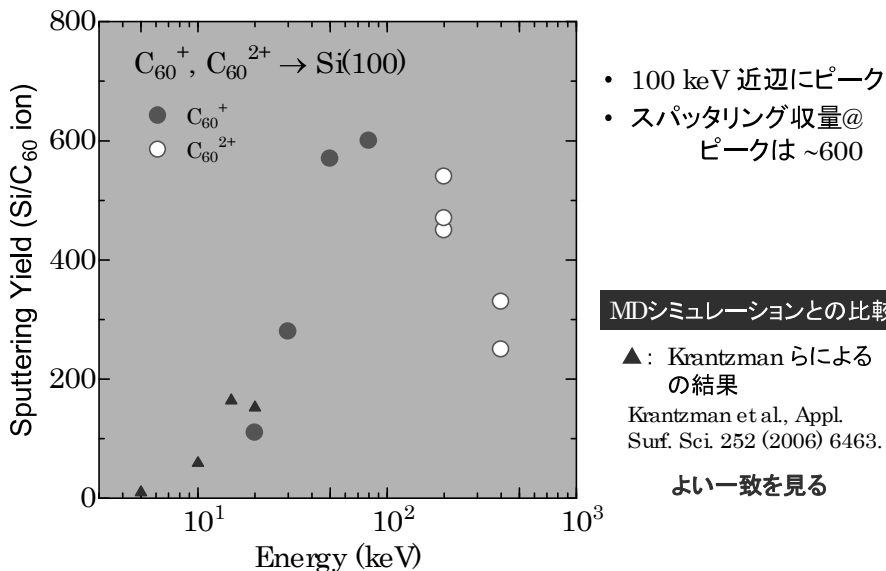
## Measurement of Sputtered Layer by RBS



非晶質層の厚さの変化によってスパッタリング量を評価



### Energy Dependence of Sputtering Yield



### Comparison with Single-atomic Ions by Sigmund

今回の結果: どの程度非線形なのか?

Sigmund の理論より求めた炭素の単原子イオンのスパッタリング収量と比較

垂直入射、後方スパッタリングに対するスパッタリング収量:

$$Y = \frac{0.042\alpha(M_2/M_1)S_n(E, Z_1, Z_2)}{NU_0}$$

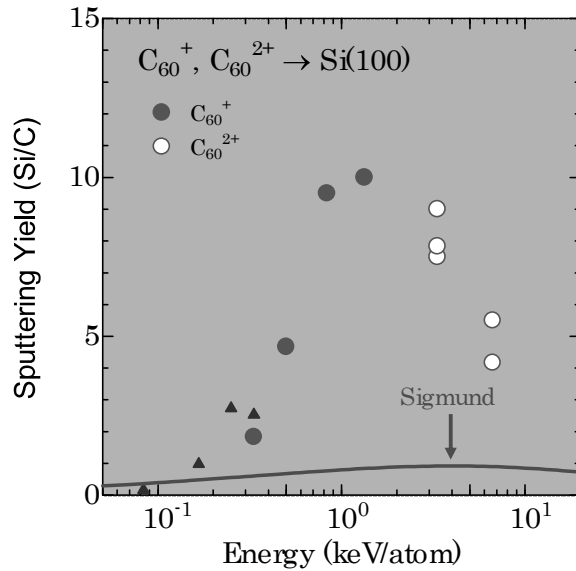
$\alpha(M_2/M_1)$ : 入射粒子と標的の質量比で決まる定数、0.456 for  $M_2/M_1 = 2.33$

$S_n$ : 核的阻止能、SRIM2008 で計算

$N$ : 標的の原子密度、 $4.9770 \times 10^{22}$  atoms/cm<sup>3</sup> for Si

$U_0$ : 標的の昇華エネルギー、4.67 eV for Si

### Comparison with Single-atomic Ions by Sigmund



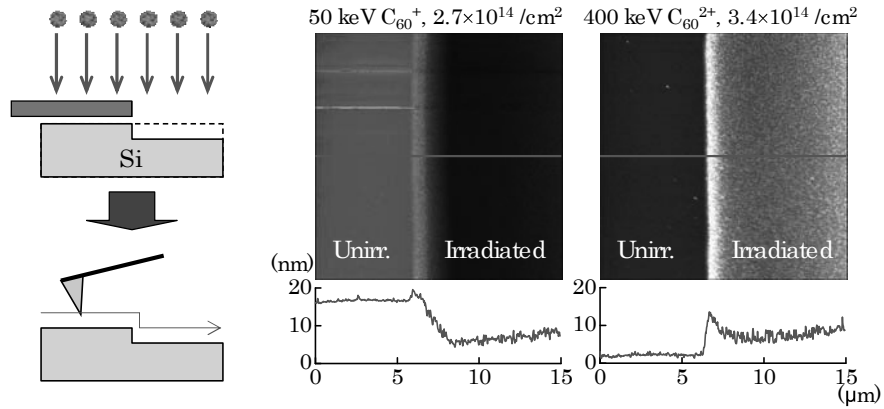
- ピーク位置:  
低エネルギー側にシフト
  - スパッタリング収量:  
 $C_{60}@ 1.3 \text{ keV}: \sim 10$   
Sigmund@ 1.3 keV:  $\sim 0.8$
- 顕著な非線形性

### Summary

- ✓ 20-400 keV  $C_{60}$  イオンを非晶質化した Si 表面に照射した場合のスパッタリング収量を評価した。
- ✓ スパッタリング収量は 100 keV 近辺にピークを持ち、この時  $C_{60}$  イオン 1 個当たり 600 程度の値になる。
- ✓ この値は、Sigmund の理論から得られた等速の C イオンのスパッタリング収量の 700 倍程度になる。

## Surface Swelling of Si by C<sub>60</sub> Ion Bombardment

AFMによる照射・未照射領域境界の段差の評価



- ✓スパッタリングと同時にスウェリングが起こっている。
- ✓C<sub>60</sub>イオンのエネルギーに依存  
→ スパッタリング収量のピークとの関係は？

## Next Plans

- スパッタリング収量のエネルギー依存
- 表面蓄積炭素量
- 表面の照射損傷の解析

実験事実: 1. Si表面のスウェリングを観測 } C<sub>60</sub>のエネルギーに依存?  
2. Si表面の色が変化

手法: C<sub>60</sub>イオンのエネルギーをパラメータ

1. 原子間力顕微鏡を使った表面形状の観測
2. 表面近傍の電子状態の観測

スパッタリング機構の検討  
最適条件(エネルギー)の提案

### 3.6 高分子ナノ構造形成から見積もられた凝縮相中のクラスターイオン相互作用過程の定量評価

阪大・院工：関 修平、渡辺省伍、麻野敦資

原子力機構・高崎：斎藤勇一、千葉敦也、鳴海一雅、杉本雅樹

#### 1. はじめに

高エネルギー粒子線（イオンビーム）を高分子の薄膜に入射させ、飛跡に沿ったイオントラック中のみでの架橋反応をナノ構造形成に利用することが十分に可能である。照射後、もとの高分子が可溶性有機溶媒にて現像（洗浄）を行うと、同一の薄膜内において架橋反応が起こっていない部位は完全に溶解し、基板上から除去されていくが、イオントラック内中で架橋反応を起こした部位は、ゲル化による不溶化にともない円柱状ナノ構造体として基板上に単離される。[1-6]

入射粒子を“単一”の粒子でなく複数の原子の集合体とした場合、形成される構造体のサイズ・形態はどのように変化するのであろうか。本項では、高分子材料に対してクラスターイオン粒子を照射することでナノ構造体を形成し、そのサイズと照射した粒子の LET との高い相関について評価を行った。

#### 2. 実験

対象の材料としては、すでに高い効率でナノ構造体形成が確認されている高分子材料として良く知られている poly(carbosilane) を用い[7-10]、この高分子を適切な表面処理を施された Si 基盤上に薄膜化し、日本原子力研究開発機構、高崎量子応用研究所のタンデム加速器から C、Al のクラスターイオンビーム照射を行った。照射後、膜を diethylether に浸漬させることで未架橋部分を除去し、基盤上にナノ構造体を単離した後、isopropylalcohol で洗浄した。ナノ構造体のサイズは原子間力顕微鏡（AFM）を用いて精密定量を行った。一方で、SU-8[11,12]は高感度の架橋性高分子かつ高いアスペクト耐性を有する材料としてよく知られており、本研究ではこの高分子薄膜化についても、C、Al のクラスターイオンビーム照射を行った。照射後、膜を diacetonealcohol に浸漬させることで未架橋部分を除去し、基盤上にナノ構造体を単離した後、isopropylalcohol で洗浄した。ナノ構造体のサイズは同じく原子間力顕微鏡（AFM）を用いて精密定量を行った。

#### 3. 結果と考察

図 1 に各種 Al クラスター粒子を用いて形成した SU-8 ナノ構造体の AFM 像を示した。ナノ構造体は明確な一次元形状をとっており、架橋性高分子ナノワイヤーは全てのクラスター粒子照射において観察された。ナノワイヤーの表面数密度は、Al<sub>1</sub> 照射においては独立した Al イオンの数を正確に反映しているが、Al<sub>2</sub>–Al<sub>4</sub> の照射では、入射クラスター粒子を上回っている。これは、材料入射に伴うクラスター粒子分裂後の断片が、それぞれナノワイヤーを与えていること示唆している。Al<sub>1</sub> において観察され均一径ナノワイヤーと比較し、

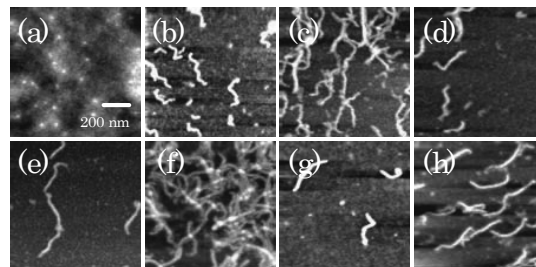


Fig. 1. AFM micrographs of polycarbosilane nanowires on Si substrate produced by C<sub>2</sub>–C<sub>10</sub> cluster ion beam at ion fluences of  $3.0 \times 10^8 \sim 5.0 \times 10^9$  ions cm<sup>-2</sup>, followed by development in benzene. Images (a)–(h) were observed for the nanowires produced by 1.2 MeV C<sub>2</sub> (a), 1.8 MeV C<sub>3</sub> (b), 2.4 MeV C<sub>4</sub> (c), 3.0 MeV C<sub>5</sub> (d), 3.6 MeV C<sub>6</sub> (e), 4.2 MeV C<sub>7</sub> (f), 4.8 MeV C<sub>8</sub> (g), 5.4 MeV C<sub>9</sub> (a), and 6.0 MeV C<sub>10</sub> (h), respectively.

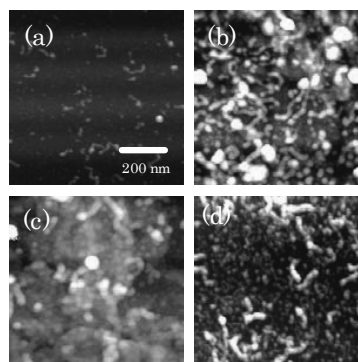


Fig. 2. SU-8 にクラスターイオン粒子を照射することによって得られたナノ構造体の AFM 画像。(a)–(d)は  $\sim 0.3 \mu\text{m}$  の SU-8 の膜に 1.5 MeV/atom の Al<sub>1</sub>–Al<sub>4</sub> 粒子を  $0.50 \sim 2.0 \times 10^9$  particles cm<sup>-2</sup> フルエンスで照射を行った。

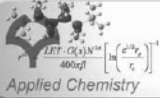


Al<sub>3</sub>、Al<sub>4</sub>の与えるナノワイヤー（図 1-c,d）の断面系は不均一分布となる。図 1-d 中におけるナノワイヤーのうち最小径のものは、図 1-a における均一径と良く一致する。これは、クラスター粒子から発生した Al<sub>1</sub> 断片によるナノワイヤー生成と推測される。照射による SU-8 での架橋反応は化学増幅過程を経るため、架橋効率 ( $G(x)$ ) は非常に高く、 $G(x) \sim 3-5 (100 \text{ eV})^{-1}$  [11,12] と報告されている。 $G(x)$  及びクラスター粒子の LET から予測されるナノワイヤー径は計算すると 9.0 nm (Al<sub>1</sub>) ~ 18 nm (Al<sub>4</sub>) であるが、実際に形成されたナノ構造体から断面半径は、Al<sub>1</sub> から Al<sub>4</sub> の順に 10、13、18、25 nm となり、わずかに大きな値となった。径の増加はクラスター粒子中の原子数に対してほぼ直線的に増加している。これはクラスター粒子の LET の推定値が、構成原子の LET の和より高くなることを示唆している。

Fig. 2 には各種 C クラスター粒子を用いて形成した poly(carbosilane) ナノ構造体の AFM 像を示した。ナノ構造体は明確な一次元形状をとっており、架橋性高分子ナノワイヤーは C<sub>1</sub> を除く全てのクラスター粒子照射において観察された。C<sub>1</sub> 粒子においては、各イオンの LET の和として計算した場合も、ナノワイヤーの形成要件となるエネルギー付与密度を満たしておらず、これらの粒子においてナノワイヤー形成が確認されないことは妥当である。ナノワイヤーの表面数密度は、C<sub>2-4</sub> 照射においては独立したクラスター粒子の数を正確に反映しているが、C<sub>5-9</sub> の照射では、入射クラスター粒子を上回っている。これは、材料入射に伴うクラスター粒子分裂後の断片が、それぞれナノワイヤーを与えていること示唆している。単一粒子ナノ加工法の最大の特徴は、そのナノワイヤーの全長が、ターゲットとなる膜厚を正確に反映する点であるが、特に C<sub>2-4</sub> 照射において観測されるナノワイヤーは、もはやその全長が一定として観測されない。これはターゲット膜を通過中に引き起こされるクラスター粒子分裂の結果、ナノワイヤー形成に要求される C<sub>2</sub> クラスターの LET 条件を満たせなくなるためと考えられ、全長の統計評価から、PCS 薄膜中におけるクラスター粒子の相互作用距離がおおよそ 90 nm と見積もられた。

## References

- [1] *Appl. Phys. Lett.*, **90** (2007) 023103.
- [2] *Macromolecules*, **39** (2006) 7446.
- [3] *J. Phys. Chem. B*, **109** (2006) 19319.
- [4] *Appl. Phys. Lett.*, **88** (2006) 143511.
- [5] *J. Am. Chem. Soc.*, **128** (2006) 9036.
- [2] *Appl. Phys. Lett.*, **87** (2005) 233119.
- [7] *Macromolecules*, **38** (2005) 10164.
- [8] *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 144203.
- [9] *J. Phys. Chem. B*, **108** (2004) 3407.
- [10] *Adv. Mater.*, **13** (2001) 1663-1665.
- [11] D. Stumbo, et al, *J. Vac. Sci. Technol. B*, **11** (2003) 2432.
- [12] H. Lorenz, et al., *J. Micromech. Microeng.*, 1997, **7**, 121.



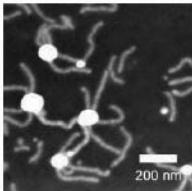
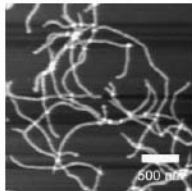
Applied Chemistry

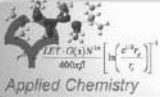
Graduate School of Engineering  
高LET研究会  
Jul. 30-31 Univ. of Tokyo  
Osaka University

## 一つ、二つ、三つ…の粒子による高分子ナノ構造の形成

### Nano-structure Formation by High Energy Single, Double, and Triple Particles

Shu SEKI  
Graduate School of Engineering, Osaka University  
PRESTO “Photons on Soft Materials”, JST



Applied Chemistry

## The Finest “Beam”: Atom

Graduate School of Engineering  
2  
Osaka University

~~Focusing!~~

# “ATOM”

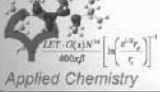
Atomos: ATOMOS

# INVISIBLE

The Finest “Beam”: Atom

## Fabrication by Single Particle

Possible or Impossible ?



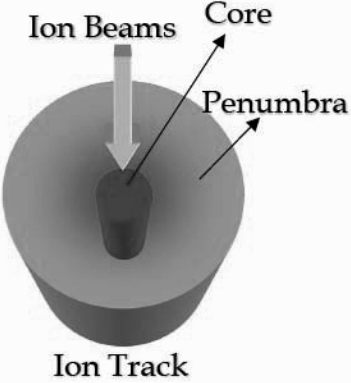
Applied Chemistry

## How to Prepare Nanowires

Graduate School of Engineering  
Osaka University

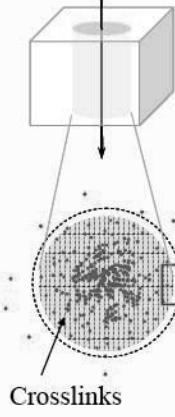
3

**Ion Beams**  
Ultra-high LET (Linear Energy Transfer) Beam

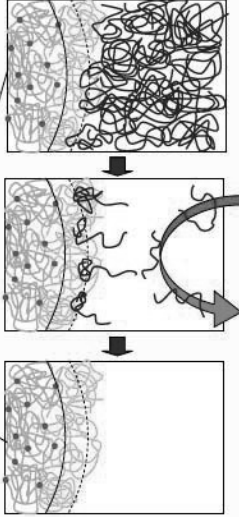



Ion Beams  
Core  
Penumbra  
Ion Track

**Particle**



Crosslinks





Applied Chemistry

## Nanowire Thickness

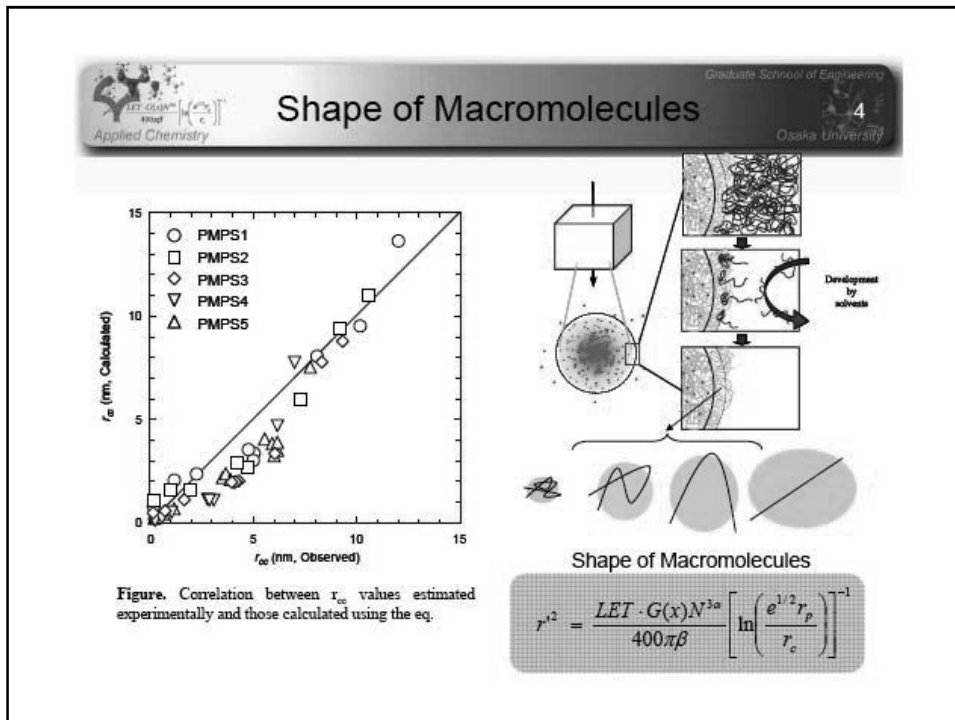
Graduate School of Engineering  
Osaka University


4

- Parameters determining the thickness of nanowires
  - A) Radial dose distribution in an ion track
  - B) Molecular weight of polymers
  - C) Crosslinking efficiency
  - D) Conformation of macromolecules

Radial dose distribution in penumbra:  $\rho_p(r) = \frac{LET}{2} \left[ 2\pi \cdot \ln \left( \frac{e^{1/2} r_p}{r_c} \right) \right]^{-1}$

Molecular weight of polymers  $\longrightarrow r^{1,2} = \frac{LET \cdot G(x)mk}{400\pi\rho A} \left[ \ln \left( \frac{e^{1/2} r_p}{r_c} \right) \right]^{-1}$



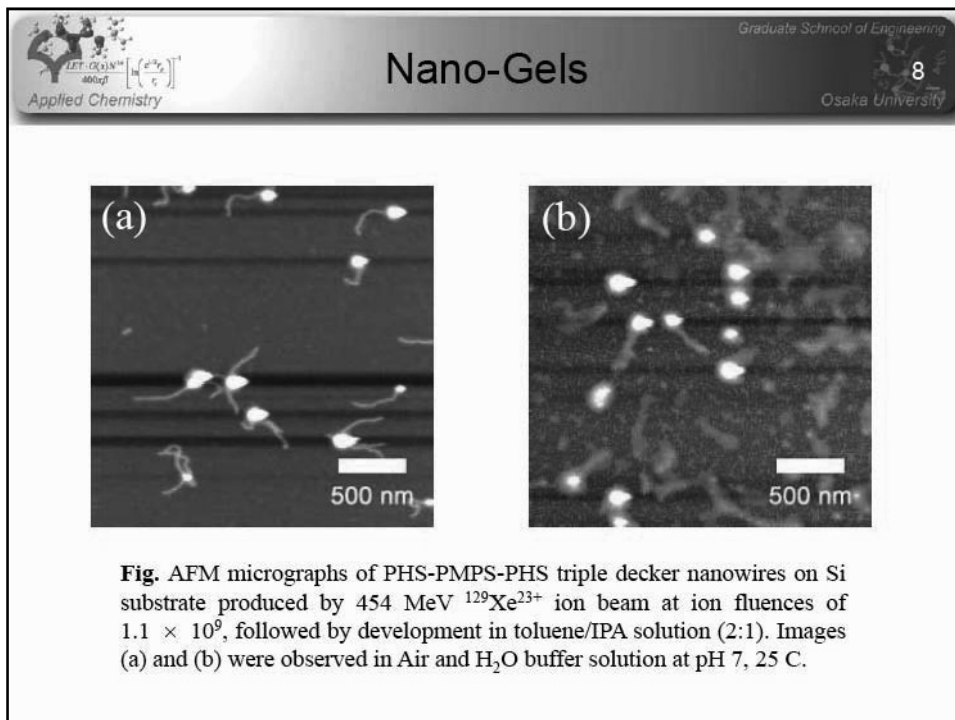
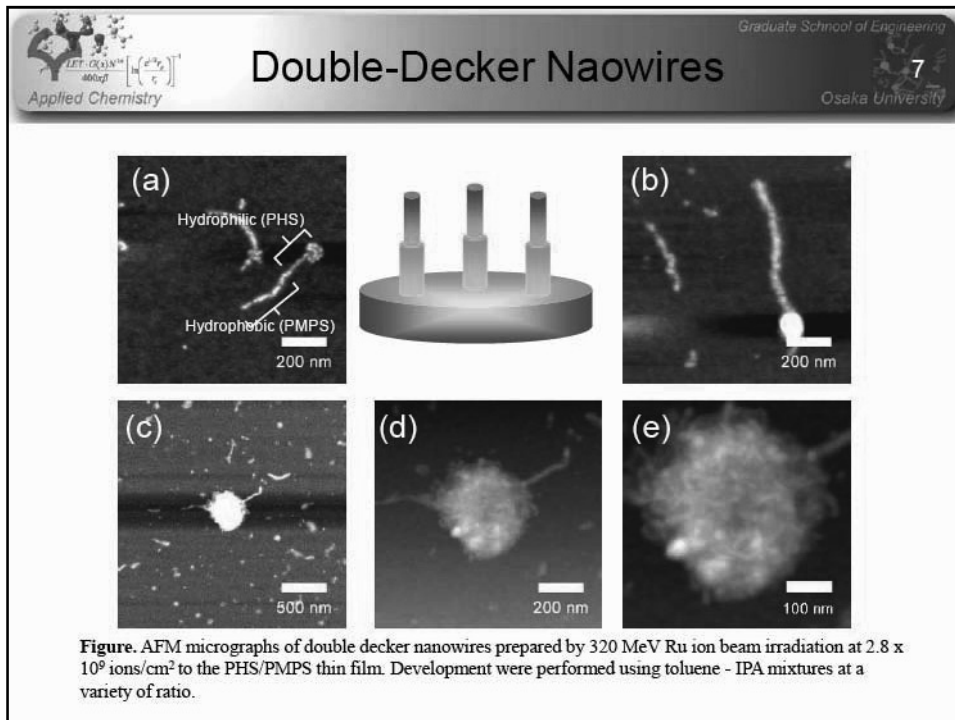
- 

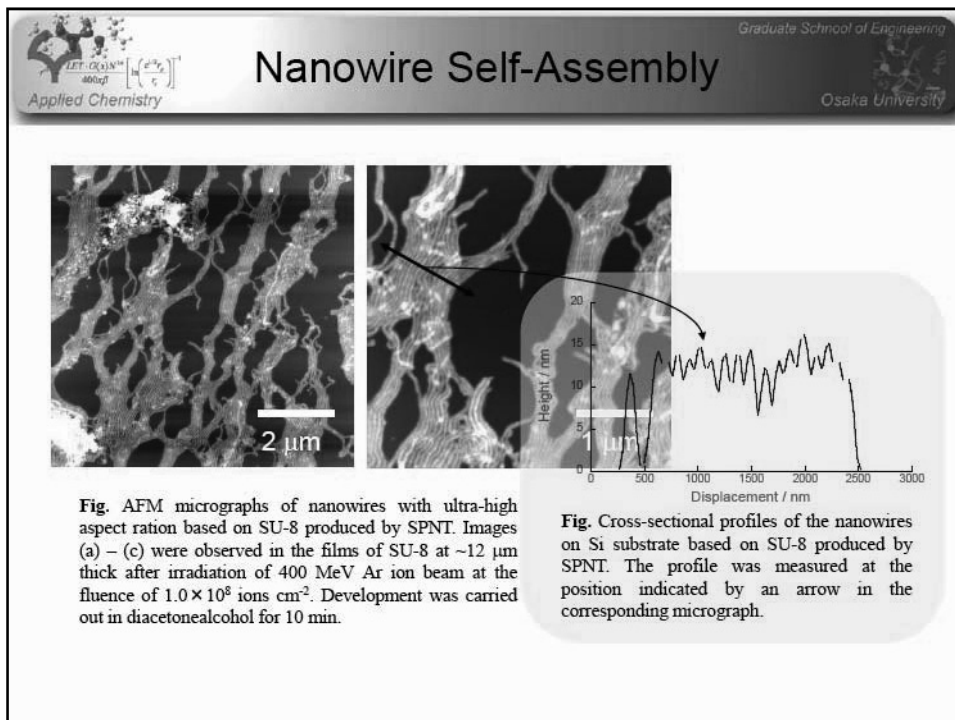
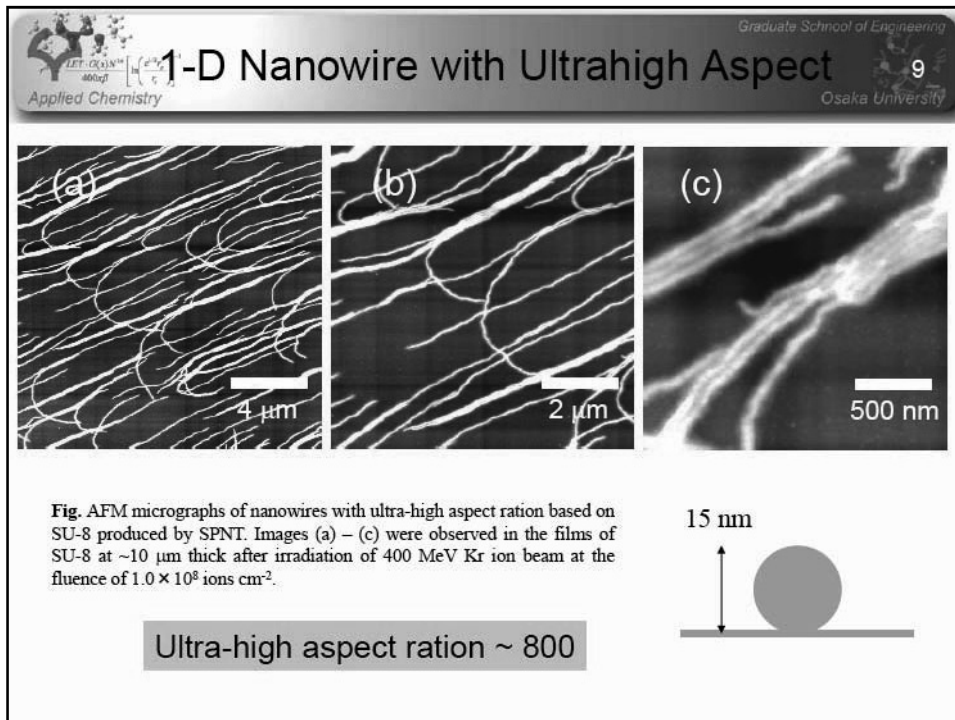
Applied Chemistry

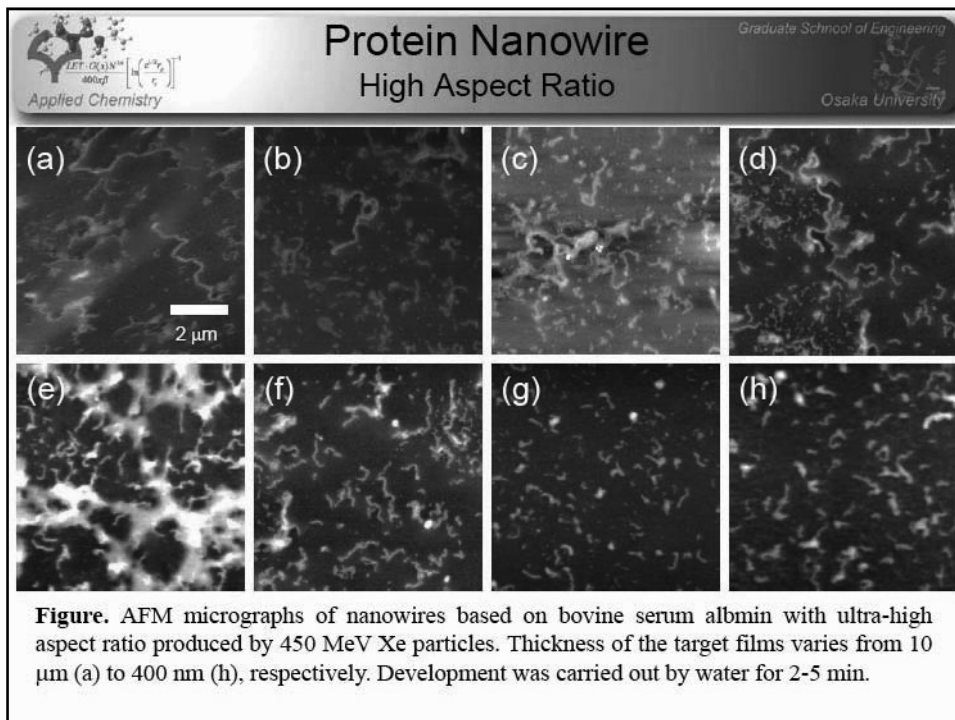
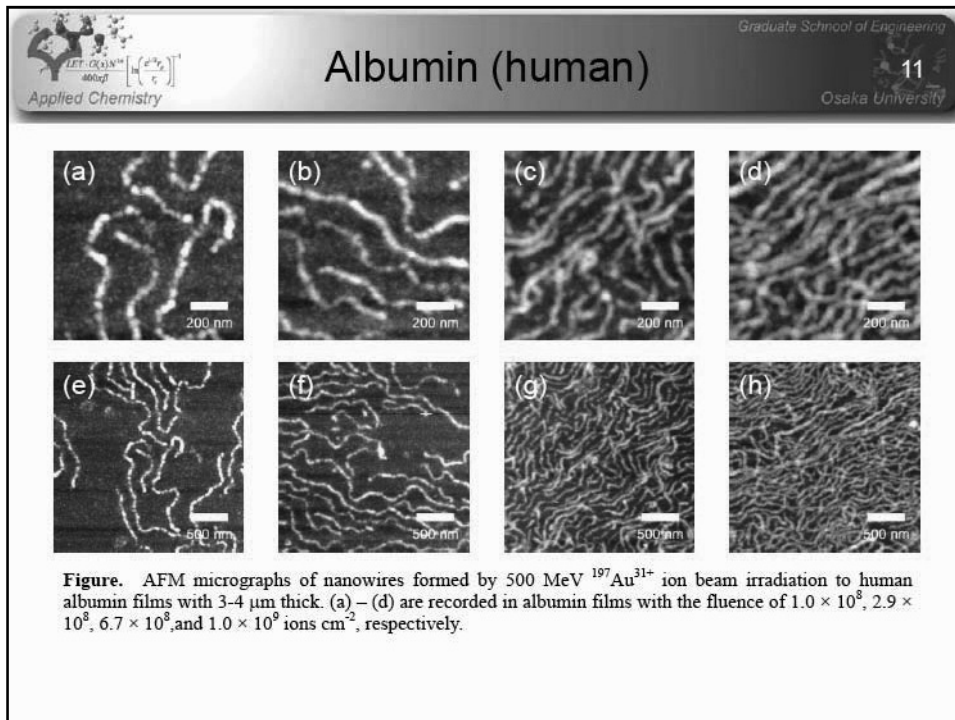
## Properties of Nanowires

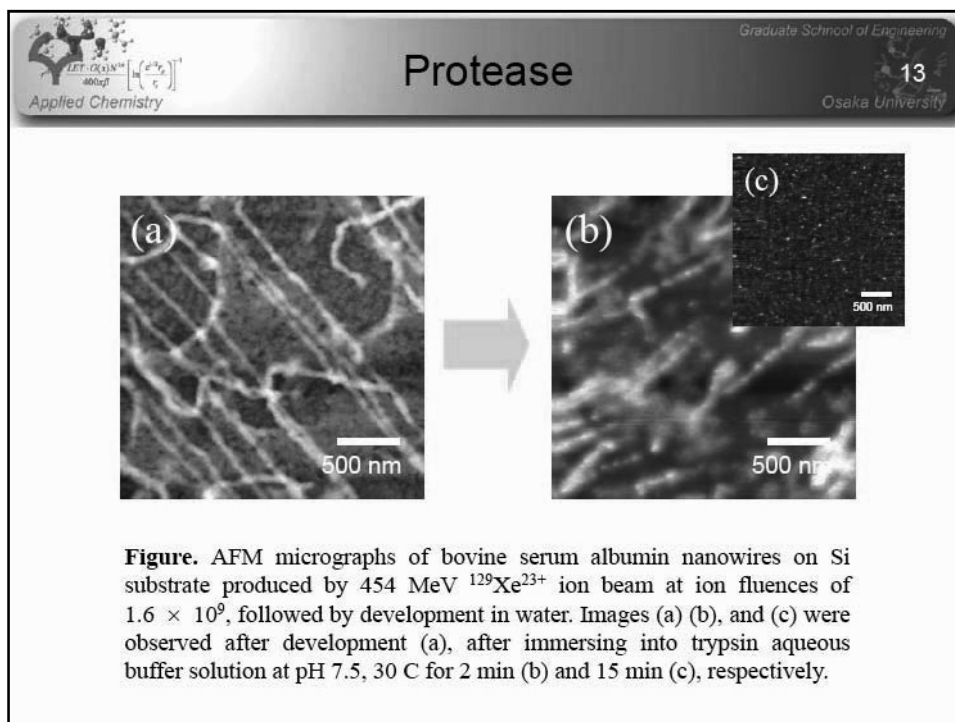
Graduate School of Engineering  
Osaka University

6
- 
- **Plausible Applications**
    - A) Electronic conductive wires
    - B) Nano-gels
    - C) Holding of Metals and Other Materials
    - D) Self-Assembly of the Nanowires







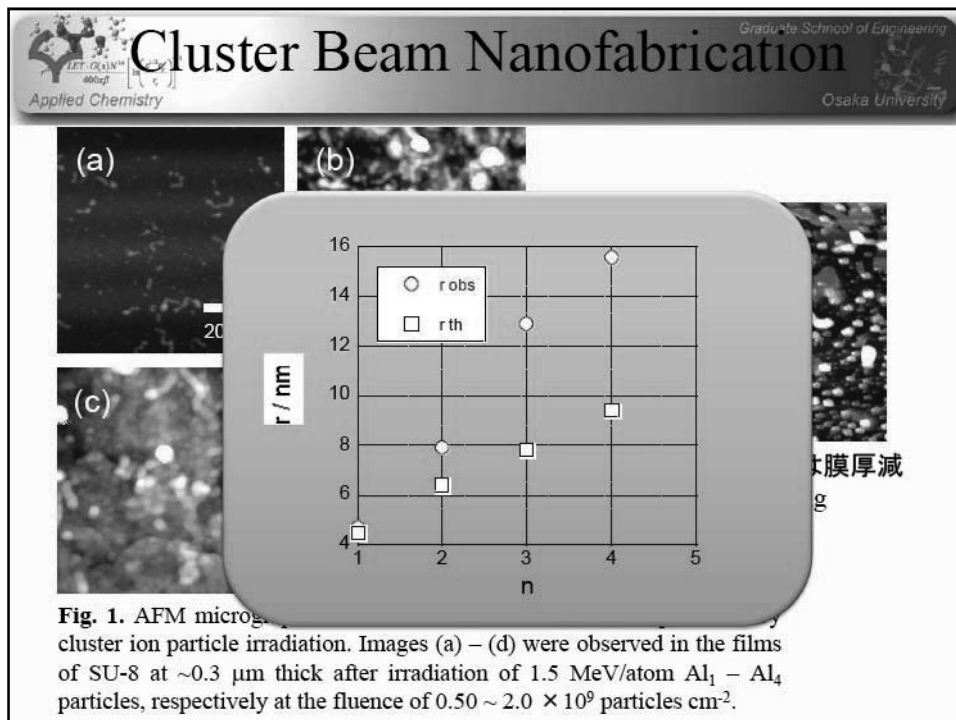
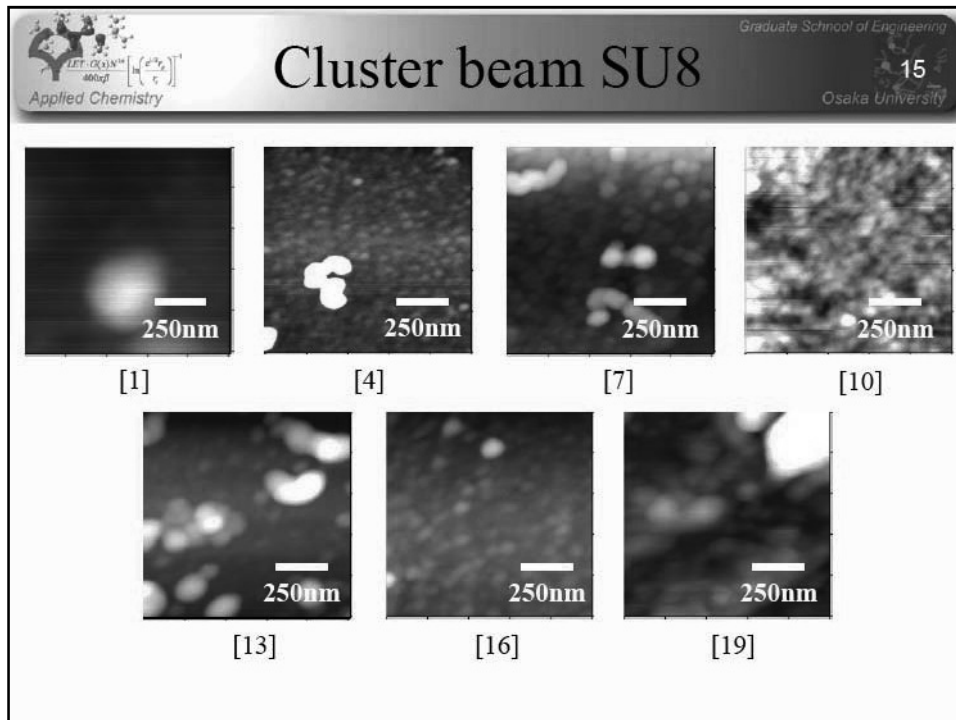


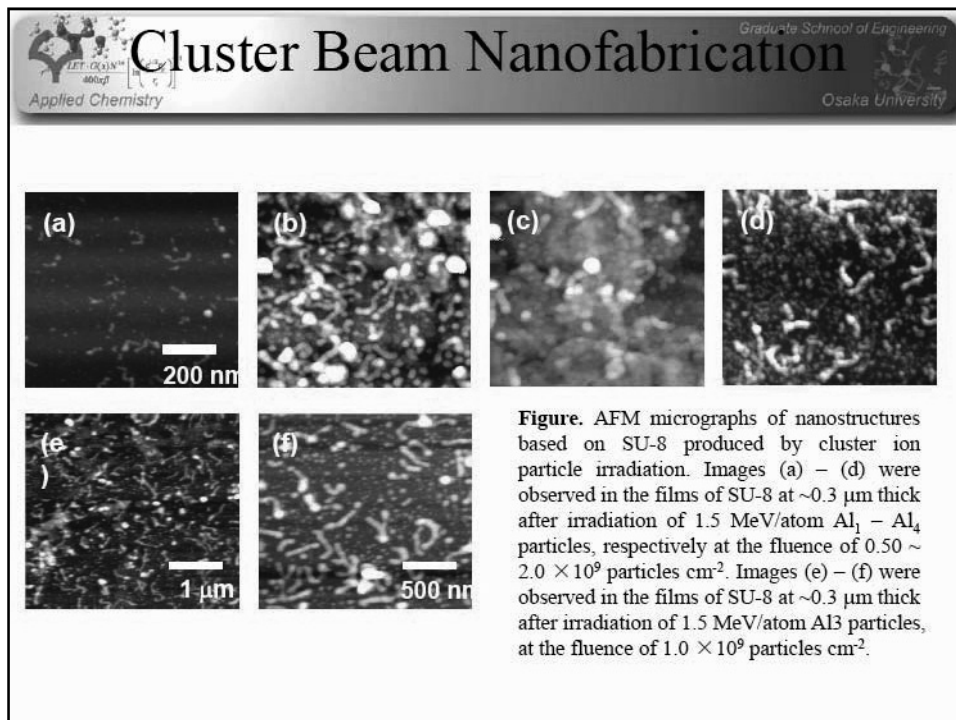
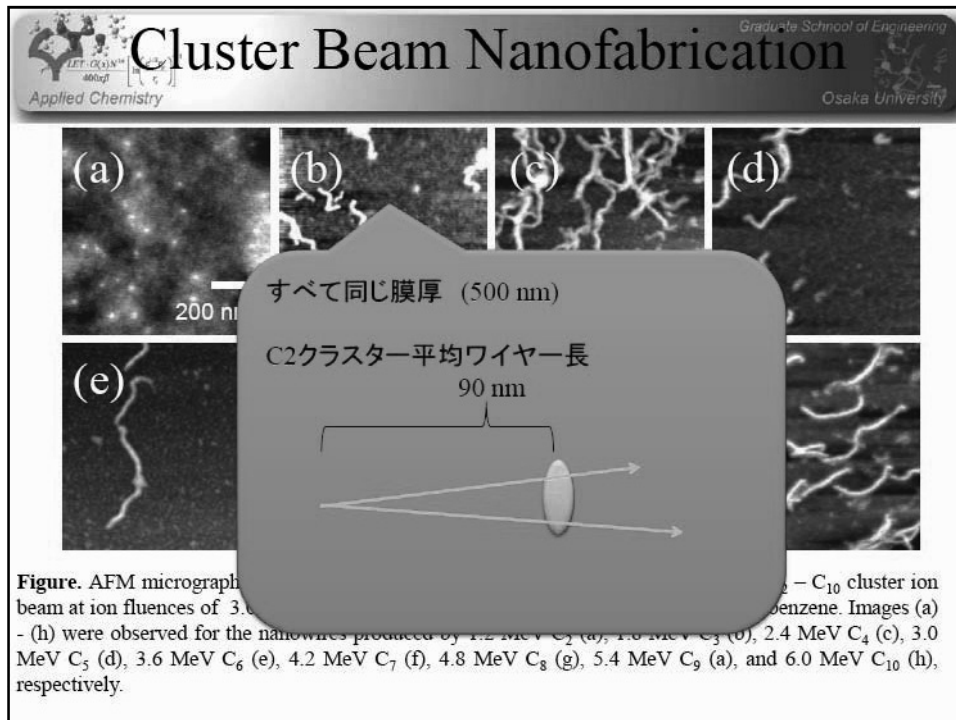
**Nanowires by single, double, triple~ particles**


Graduate School of Engineering  
14  
Osaka University

- **Cluster Particles**
  - A) Carbon cluster particles
  - B) Aluminum cluster particles
  - C) Cluster particles consisted with heavy atoms










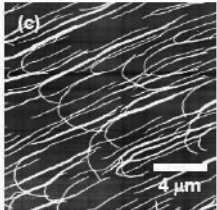
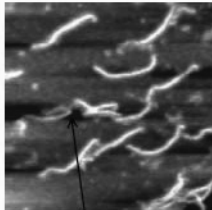
Applied Chemistry

## Cluster Track Structure

Graduate School of Engineering  
19  
Osaka University

$$r^{1/2} = \frac{LET \cdot G(x) N^{3\alpha}}{400\pi\beta} \left[ \ln \left( \frac{e^{1/2} r_p}{r_c} \right) \right]^{-1}$$


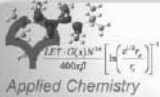



高エネルギー粒子との相互作用による高分子反応の理論

本グループが独自に導いた理論式を用いたクラスタートラック構造の詳細解析

- 1) クラスタートラックの可視化
- 2) クラスタ粒子の空間的広がりを実際に“見る”
- 3) 単一の粒子では不可能な材料の形成

クラスタ粒子の分裂が“見える”



Applied Chemistry

## Acknowledgements

Graduate School of Engineering  
Osaka University

- Dr. S. Tsukuda at IMRAM, Tohoku University
- Dr. Saito, Dr. K. Narumi, Dr. A. Chiba, Dr. M. Sugimoto at JAEA, Takasaki.
- Mr. S. Watanabe at Graduate School of Engineering, Osaka University
- Prof. H. Shibata at Kyoto University
- Dr. Y. Kunimi, Dr. K. Maeda, and Prof. S. Tagawa at ISIR Osaka University


  

- Present work was supported by Grant-in-Aid in Scientific Research from Japan Society for the Promotion of Sciences.

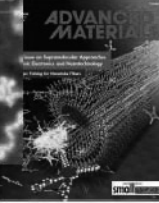
  




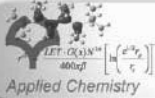
OSAKA UNIVERSITY



JAEA



Applied Chemistry

## Conclusion

Graduate School of Engineering

21

Osaka University

- Non-homogeneous field of chemical reactions in an ion track leads
  - Cylindrical nano-structures based on crosslinking reactions of the target polymeric materials.
  
- The present technique realizes tailoring of nanowires with sub-nm (molecular size) resolution.
  - The sizes of nano-wires are completely under control
    - Thickness, Length, Number density, Structures, etc.
  - Orientation control of nano-wires by an use of the “planted” nanowires on the substrate.
  
- Simple model of radial distribution of crosslinks in an on track provides good interpretation to the size of the nanowires
  - Applicability of the present technique to a variety of polymeric materials.

We can obtain nanostructures of  
any materials we want !

### 3.7 FeRh 合金薄膜の磁性におけるクラスターイオン照射効果

大阪府立大学工学研究科：藤田直樹、小杉晋也、松井利之、岩瀬彰宏  
原子力機構・高崎量子応用研：斎藤勇一、千葉敦也

#### 1. はじめに

1原子あたりのエネルギーが1MeVの領域であるクラスターイオンが固体物質と相互作用することを考える。クラスターイオンにおける原子間距離は、典型的には数Åである。したがって、クラスターイオンを構成する個々の原子と固体ターゲットの衝突では、数Åの距離を隔てて、同時に衝突イベントが起こり、また、数フェムト秒程度の時間差で、同じ場所での衝突イベントが生ずる。イオンが衝突するときに生ずる collision cascade の空間的広がりが数-10ナノm程度、固体結晶のデバイ振動数の逆数が $10^{-13}$ 秒程度であることを考えると、クラスターイオンにおける個々の原子と固体ターゲットの衝突には、時間的・空間的相関が生ずることになる。このような相関は、クラスターイオンと同じ質量（例えばC8クラスターに対する $^{96}\text{Mo}$ ）の単原子イオンでは見られないことである。このようなクラスターイオン特有の時間空間的相関を有した固体ターゲットとの相互作用が、固体の構造や物性にどのような影響を及ぼすかということは大変興味深い。そこで、我々は半導体であるSi単結晶の構造、金属間化合物であるFeRhの磁性がクラスターイオン照射によってどのような変化を起こすかを調べる実験を実施した。研究期間の前半では、主にSiに関するデータを取得し、何件かの学会で発表してきた[1,2]。また後半には、FeRhに関する実験を行った。ここではFeRhの結果を中心に述べる。

#### 2. 実験

室温より少し高温側に強磁性（高温側）-反強磁性（低温側）磁性転移点を持つFeRh薄膜をイオンスパッタ法により作製した。実験開始時には、基板をアモルファスSiO<sub>2</sub>として薄膜作製を行った。その結果は文献[3]に示している。その後、基板をMgOにしたほうが、より整った薄膜形成ができることがわかったため、ここで述べる実験では、すべて基板としてMgOを用いた試料を対象としている。試料は、まず単原子イオン照射効果を調べるために、高崎研TIARAタンデム加速器を用いて10MeVヨウ素イオン、1MeV水素イオンで照射し、照射後の磁性、結晶構造変化を、それぞれ、SQUID,XRD測定により評価した。その結果をベースに、同じFeRh薄膜をAu<sub>2</sub>,Au<sub>3</sub>クラスターイオンで照射した。比較のため、Au単原子イオン（Au1）を用いた照射も実施した。クラスター効果を評価するために、すべ

てのイオンで、同じ個数のAu原子が照射されるようにした。照射効果の評価は、ヨウ素イオン照射の場合と同じく、SQUID,XRDを用いて行った。

#### 3. 結果と考察

図1に、10MeVヨウ素イオンを照射したときのFeRh薄膜の磁化-外部磁場曲線（M-Hカーブ）を示す[4]。測定温度は20Kである。未照射試料では、磁化はほとんど0である。これは、試料が反強磁性状態であることを示す。ヨウ素イオンを照射することにより、20Kにおける磁化は、ヨウ素イオン照射量とともに増加していくことがわかる。図2は、10MeVヨウ素イオン照射および1MeV水素イオン照射により発現した飽和磁化の値を弾性的付与エネルギーの関数としてプロットしたものである。付与エネルギーの小さいところでは、飽和磁化は照射量とともに単調増加するが、あるところで最大値を示し、その後減少に転ずる。高付与エネルギーにおける磁化の減少は、照射により、非磁性のγ相が出現することで説明できるが、低付与エネルギー域での磁化増加については、その原因は未だ不明である。

以上のような単原子イオンの結果をベースに、Auクラスターイオン照射の結果を議論する。図3は、Au1単原子イオン、及びAu3クラスターイオンを照射したときのFeRh薄膜のM-Hカーブの変化の様子を示す。Au1のエネルギーは1.67MeV、Au3のエネルギーは5.00MeVであり、Au一個あたりのエネルギーを1.67MeVに揃えてある。すなわち、両方とも同じ速度のイオンである。単原子イオン照射の場合と同様、照射量とともに磁化が増加していくが、同じ個数のAu原子で比較した場合、Au3クラスターイオンの方の磁化発現が大きいように見える。そこで、照射したAu原子の個数に対して、Au1,Au3照射における飽和磁化の変化を図4に表す。照射Au原子の個数とともに飽和磁化が増加していくが、Au3照射の場合のほうが、Au1照射に対して大きい飽和磁化を示している。今まで我々は、FeRh中に生ずる照射誘起磁化は、弾性的衝突によって試料中に付与されるエネルギー値で決まるとしてきた[4]。近似的にはそれは正しいと思われるが、本実験での結果は、同じ弾性的エネルギー付与でも、クラスターイオンのように、その相互作用に時間的・空間的相関がある場合、異なった磁化発現が起こることがわかった。その物理的メカニズムを解明するのは、さらなる実験結果の蓄積が必要である。し

かし一方、本実験結果は、単原子イオンに比べ、より少ない照射量でターゲット物質の性質を変化させることを示しているため、イオン照射を物質改質へ応用する場合のクラスターイオンの優位性を示すものである。

References

- [1]岩瀬他、高 LET 研究会 (2009、東京大学)
- [2]A.Iwase et al., ASR2009 (Nov. 2009, Tokai)
- [3] Nao Fujita et al, Nucl. Instr. Meth. (2009)
- [4] Nao Fujita et al., MMM conference (Washington DC, Jan. 2010)

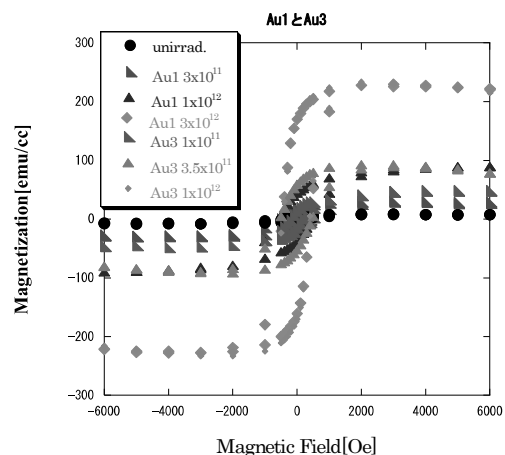


図3. Au1 単原子イオン、および Au3 クラスターイオンを照射した FeRh 薄膜における M-H カーブ。測定温度は 20 K。

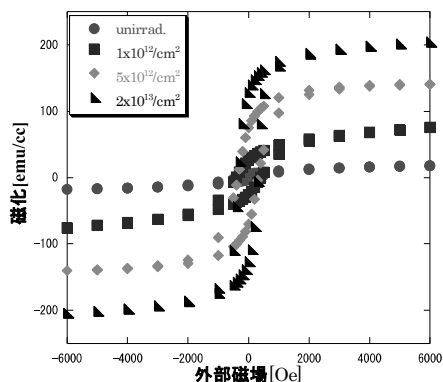


図1. 10 MeV ヨウ素イオンを照射した FeRh 薄膜の M-H カーブ。測定温度は 20 K。

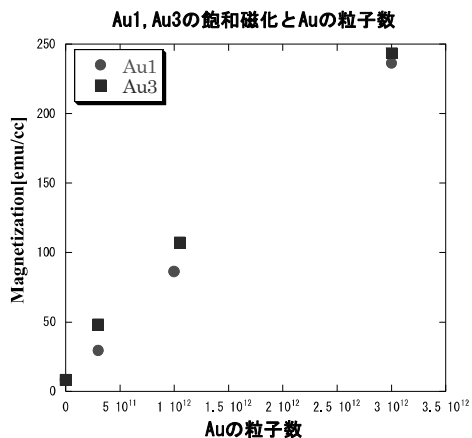


図4. Au1 イオンおよび Au3 クラスターイオンを照射した FeRh 薄膜において発現した飽和磁化の、照射 Au 原子数依存性。

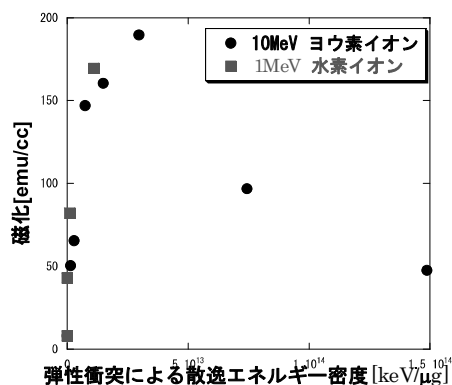
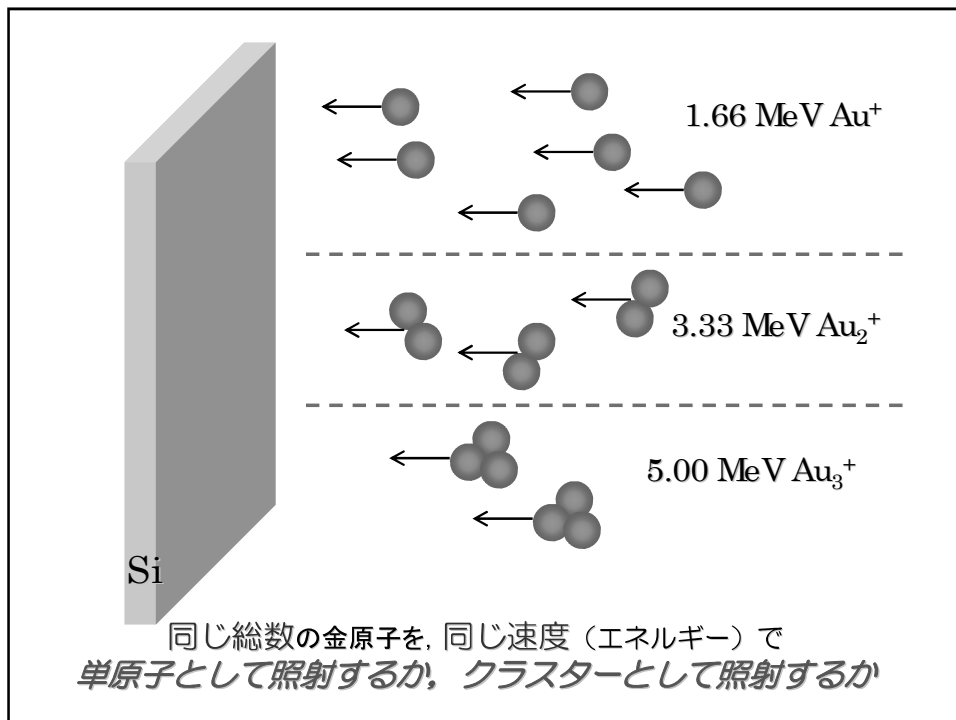


図2. 10 MeV ヨウ素イオン、1 MeV 水素イオンを照射した FeRh 薄膜において発現する飽和磁化の弾性的付与エネルギー依存性。

# クラスターイオンビーム照射 によるFeRh合金の磁性改質

岩瀬彰宏、藤田直樹、小杉晋也、松井利之、  
齋藤勇一<sup>A</sup>、石川法人<sup>A</sup>、  
大阪府立大学、原子力機構<sup>A</sup>



### クラスタービームの特徴

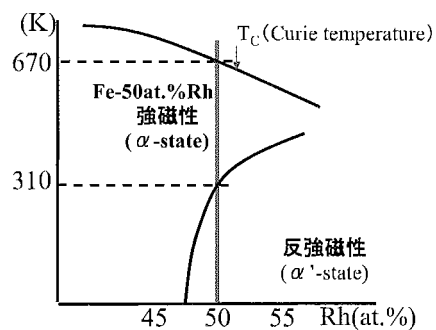
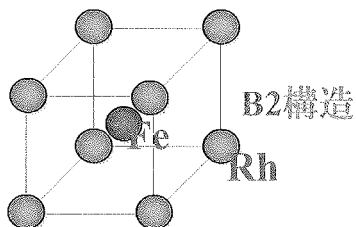
空間的、時間的に局在した電子励起、格子励起(格子振動)を誘起  
そのエネルギーが原子の再配列を形成するなら、新たな構造、  
物性発現につながる可能性

FeRh金属間化合物では、すでに、イオン照射による強磁性発現が  
観測されている

高PKAエネルギー照射で大きな磁化発現の傾向

この現象がクラスターイオンビームの場合、どうなるかが焦点

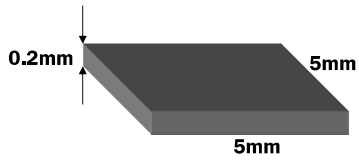
### はじめに





## 実験方法

試料: Fe-50at.% Rh



表面研磨の後、  
1100°C, 24h anneal

原子力機構 東海タンデム加速器

Ion: 200MeV  $^{136}\text{Xe}$ , 60MeV  $^{136}\text{Xe}$

原子力機構 高崎タンデム加速器

Ion: 10MeV  $^{127}\text{I}$

照射量:  $2 \times 10^{12} \sim 5 \times 10^{13}/\text{cm}^2$

GSI研究所重イオン線形加速器

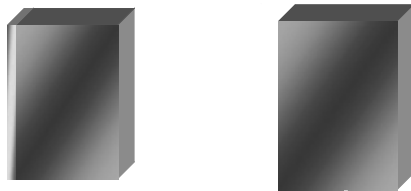
Ion: 1.5GeV  $^{136}\text{Xe}$

照射量:  $5 \times 10^{11} \sim 2 \times 10^{12}/\text{cm}^2$

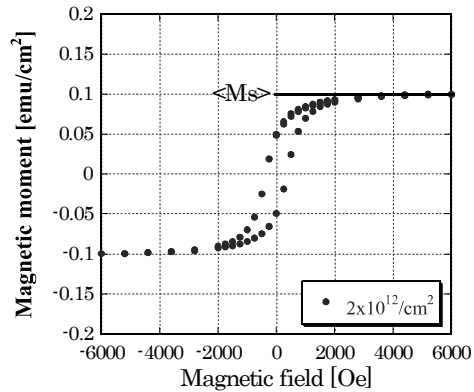
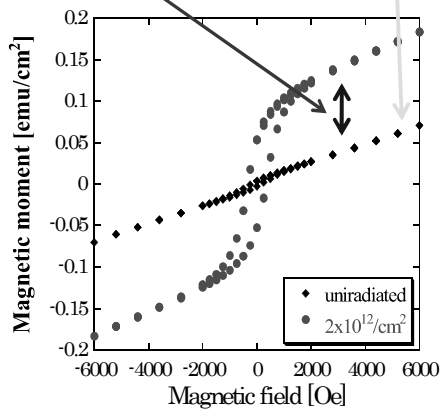
SQUID M-H測定

印加磁場: -6000Oe ~ 6000Oe

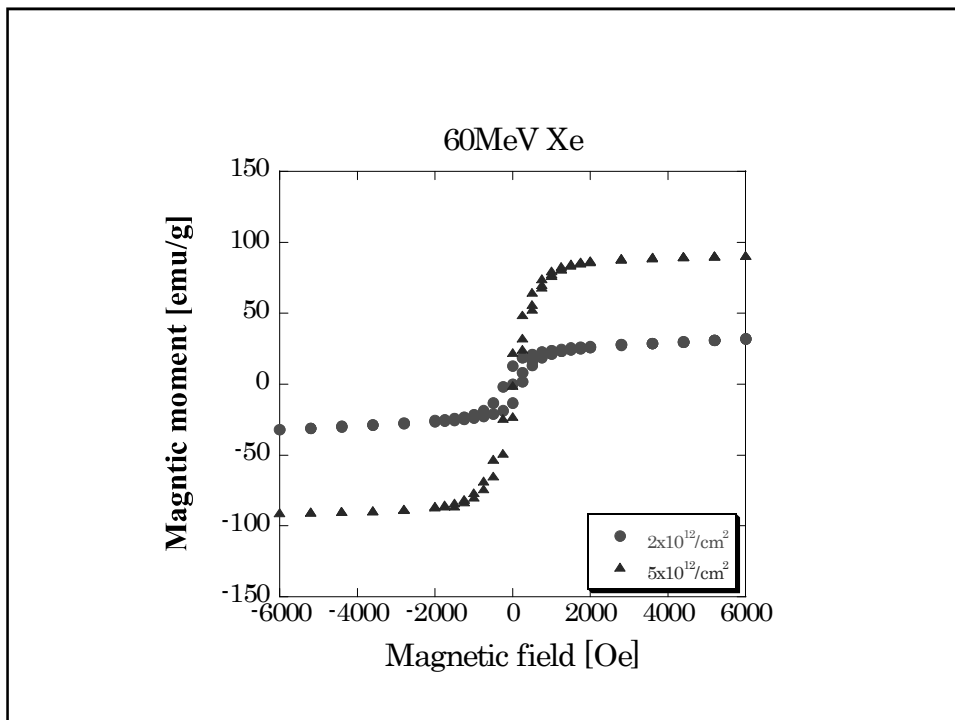
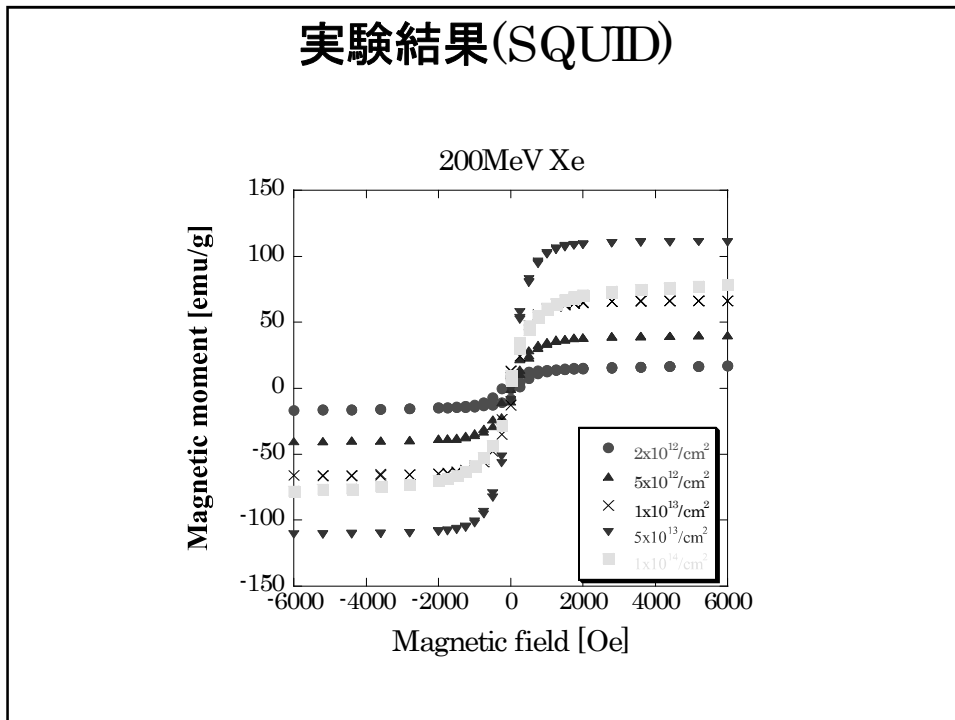
温度: 20K

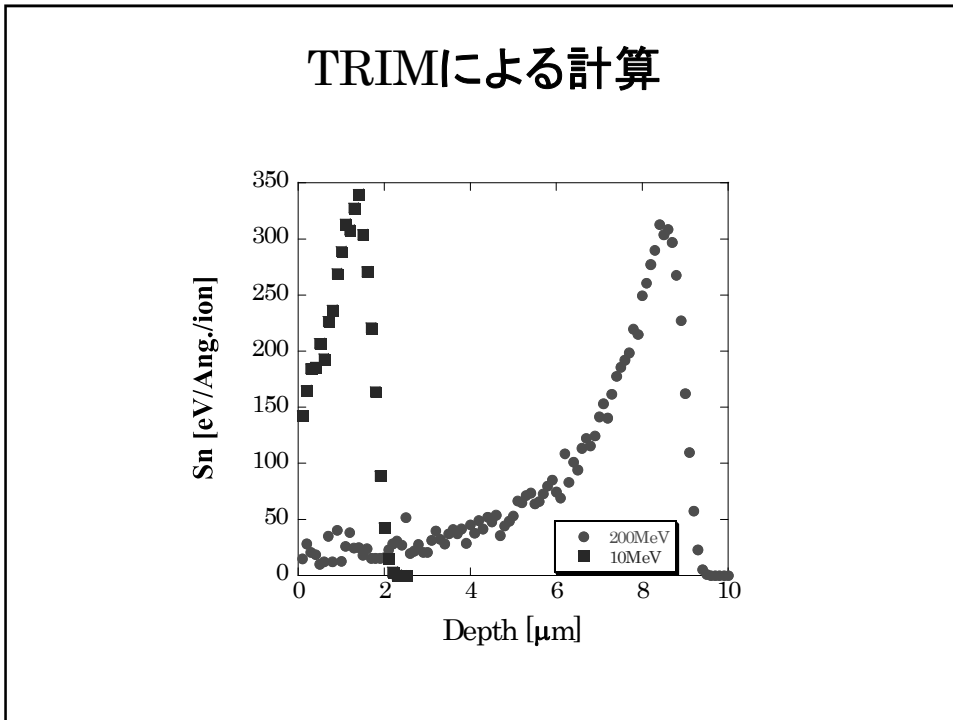
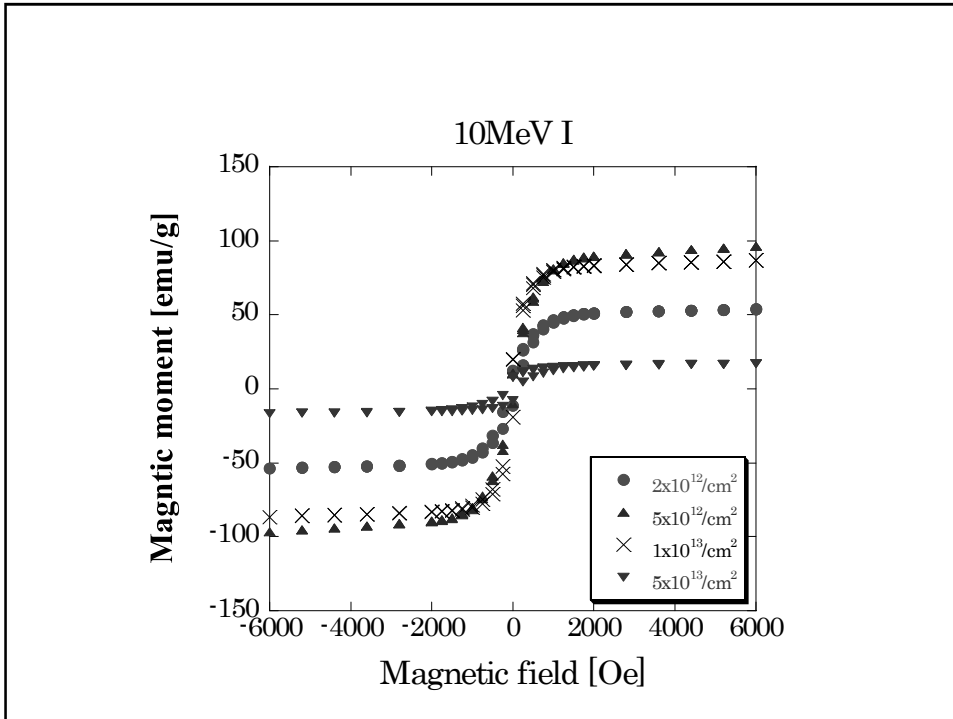


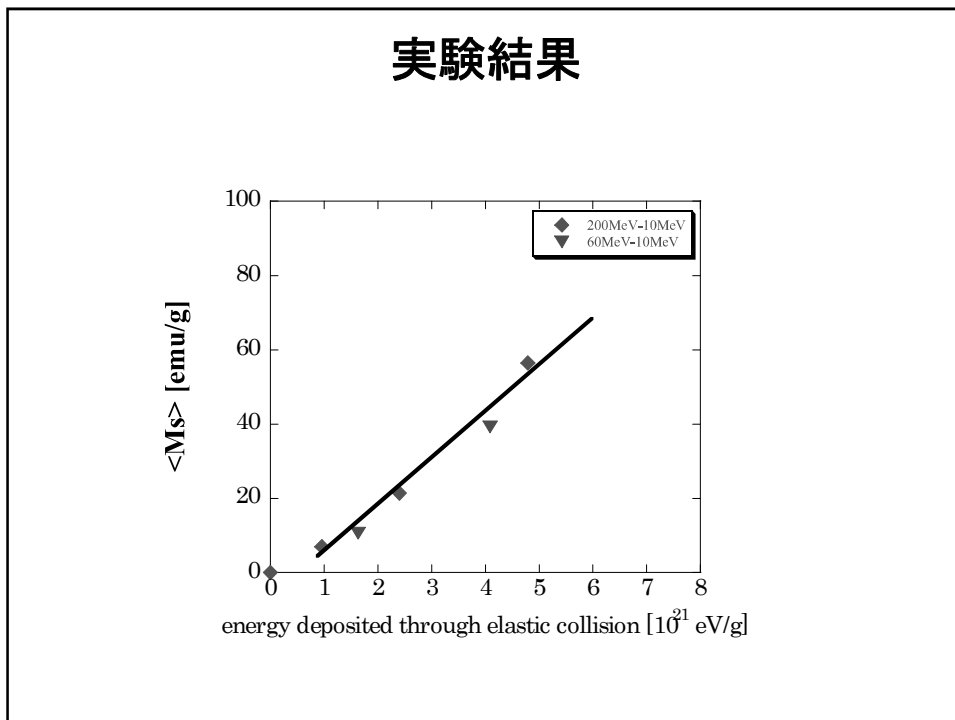
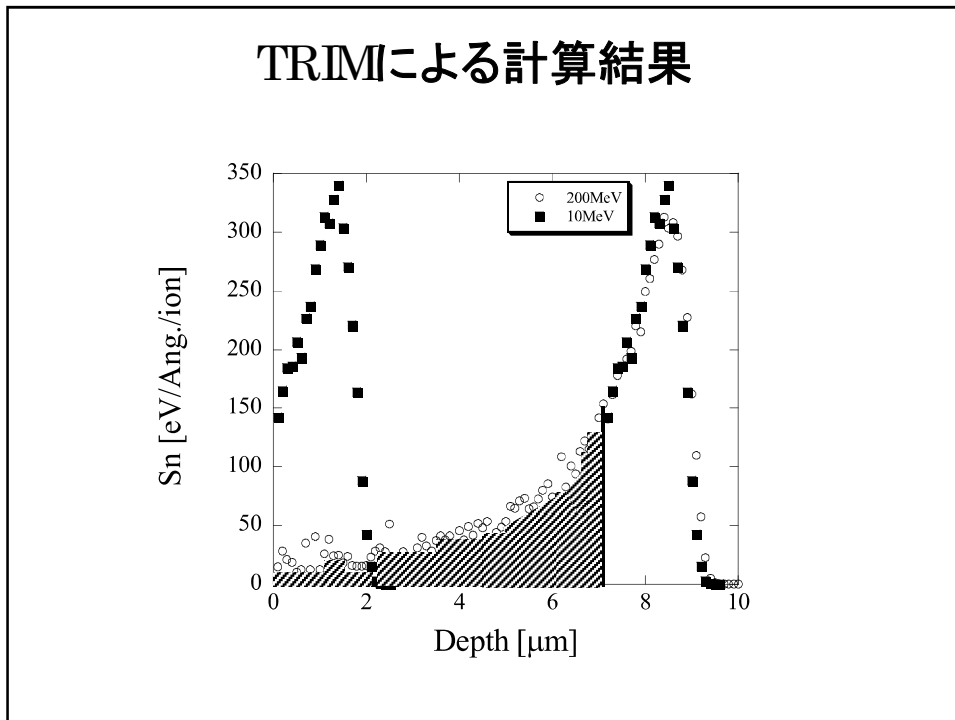
6000Oeで飽和した  
磁気モーメントの値  
を $\langle M_s \rangle$ とした。

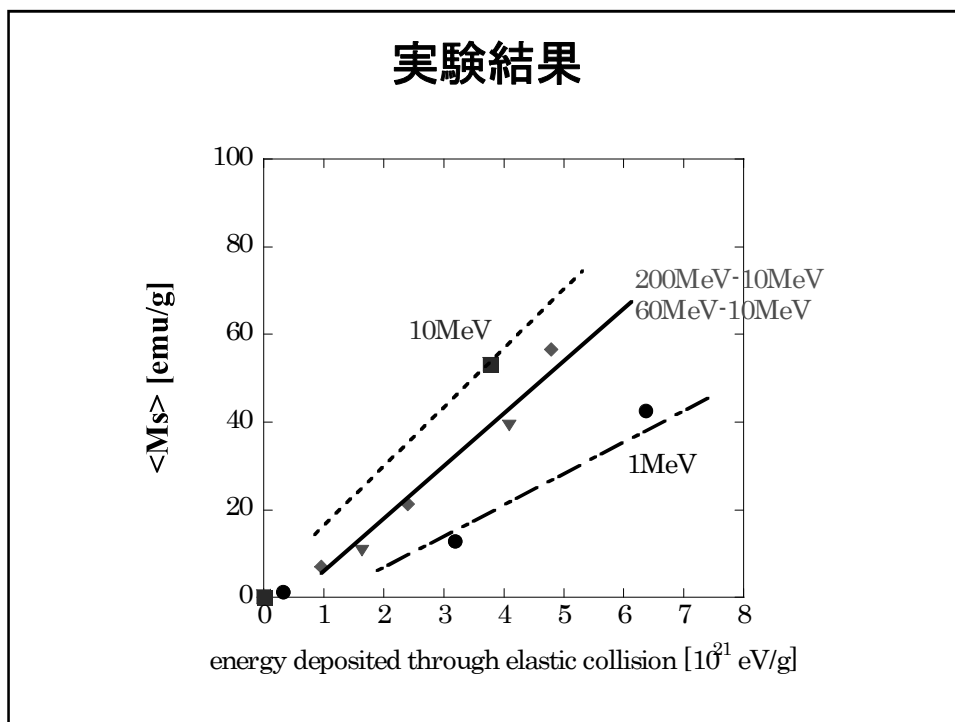


### 実験結果(SQUID)









## Experimental Procedure

### 試料作製

手法：イオンビームスパッタリング  
 ターゲット：Fe、Fe-50at.%Rh  
 基板：アモルファスSiO<sub>2</sub>  
 基板を回転させながら、積層製膜。

製膜後、600℃で24時間焼鈍。(2.0x10<sup>-6</sup>torr)

今回の試料 Fe-50at.% Rh (EPMA) thin film

### イオン照射

10MeV I イオン (原子力機構 高崎 タンデム加速器)  
 200MeV Xe イオン (原子力機構 東海 タンデム加速器)  
 照射量 1x10<sup>12</sup>~1x10<sup>14</sup> /cm<sup>2</sup> at R.T.

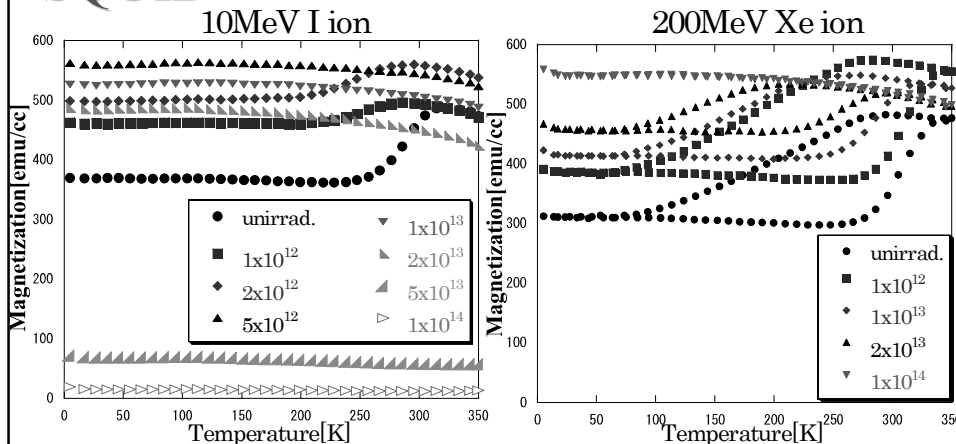
### SQUID測定

M-H測定 測定温度 20K  
 印加磁場 -0.6T~0.6T  
 M-T測定 印加磁場 0.6T  
 測定温度 5K~350K

### XRD測定

## Results and Discussion

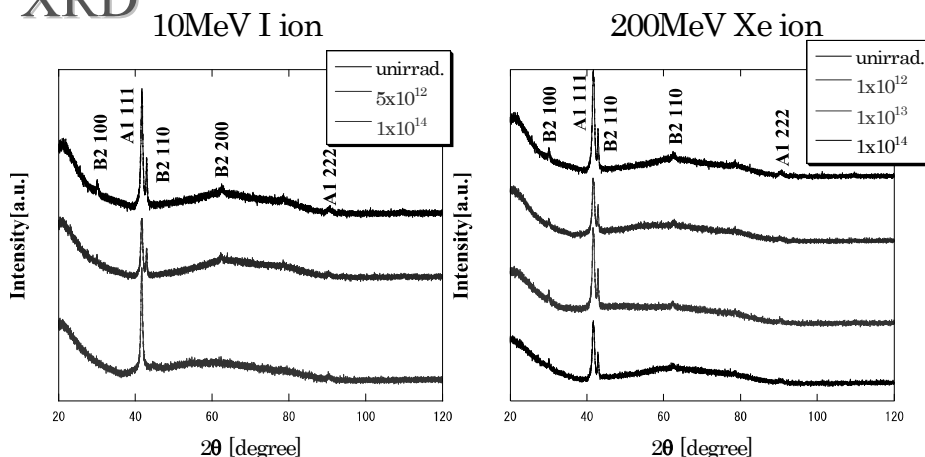
### SQUID



両図とも照射量増加に伴い、磁性転移点が低温側にシフトし、磁化が増大する。10MeVのイオンは磁化が最大になったのち、照射量が増加すると、磁化は減少していく。

## Results and Discussion

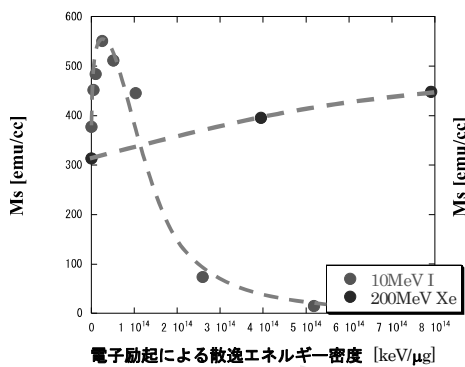
### XRD



10MeVでは、磁化が小さくなった照射量  $1 \times 10^{14} / \text{cm}^2$  では、B2構造は壊れるため、A1のみのピークが見られる。  
 200MeVでは、照射量  $1 \times 10^{14} / \text{cm}^2$  でも、B2のピークは見られる。  
 SQUIDの結果と合致する。

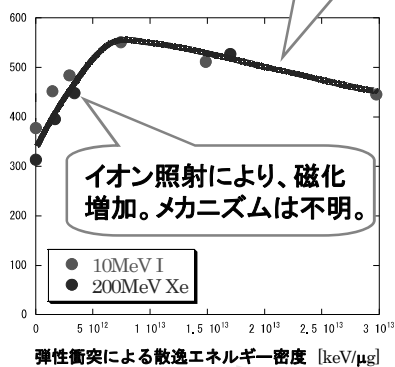
# Results and Discussion

Msと電子励起による効果



明かな関係は見られない。

Msと弾性衝突による効果

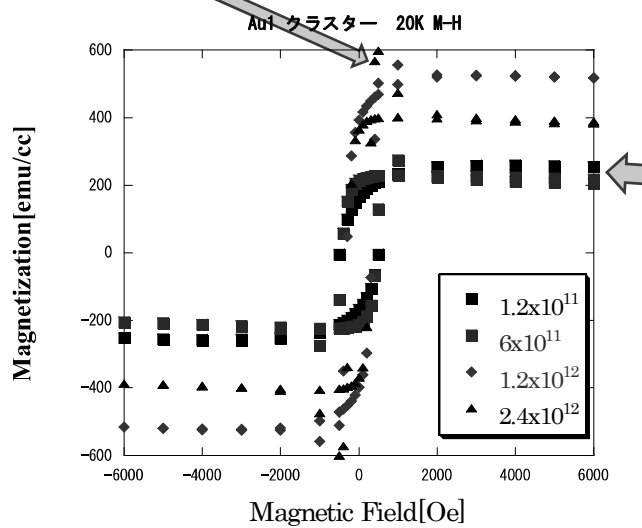


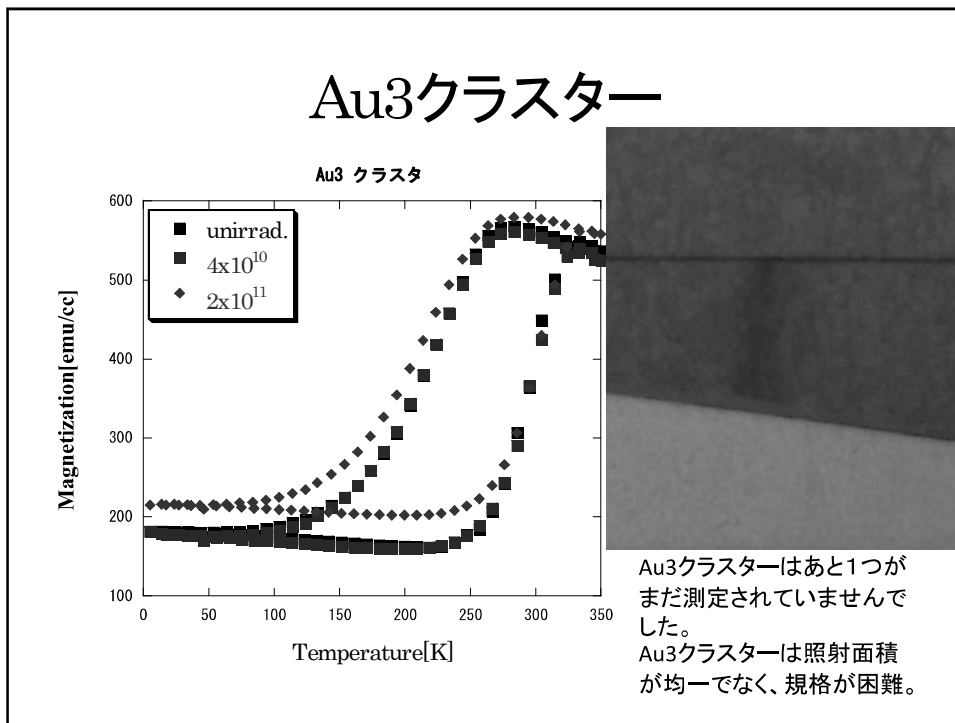
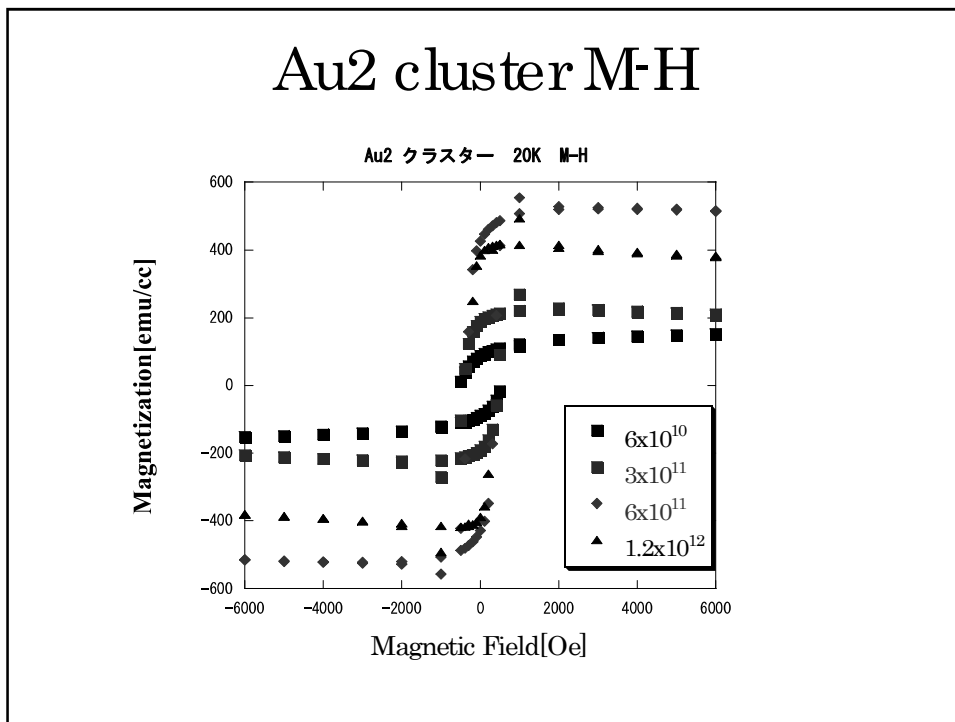
図に示す曲線にのることがわかる。

構造の乱れによって、磁化減少。

イオン照射により、磁化増加。メカニズムは不明。

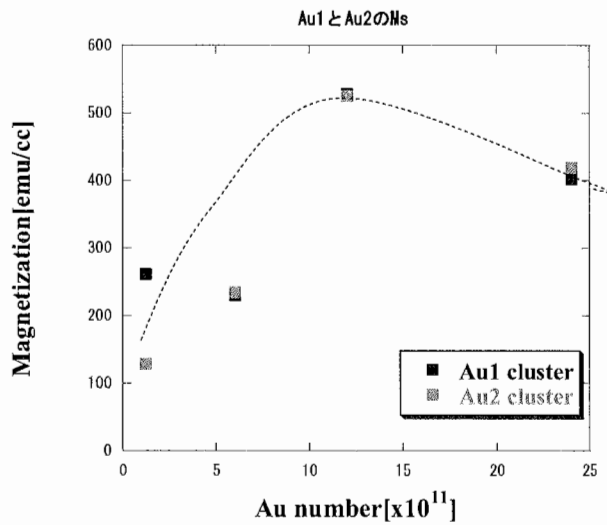
## Au1 M-H







## Au1とAu2のMs比較



### まとめ

- 1) イオンとFeRhの弾性的相互作用により低温強磁性が発現する  
(電子励起の効果ではないらしい)
- 2) クラスターイオン照射実験のために薄膜FeRh試料を作成、磁性転移は不完全だが、バルクFeRhと同じ強磁性発現を示す。
- 3) 薄膜試料を用いて1原子あたり1.67MeVのAu1,Au2,Au3クラスターイオンを照射した結果、いずれも低温でFeRhの磁性が反強磁性から強磁性へ変化した。
- 4) クラスター効果があるかどうかは現在のところ不明。

クラスタービーム照射による材料の構造・物性変化を見たり、クラスターイオンによる物性改質を試みるには、

照射野が直径5mm以上で強度の一樣なクラスタービームが望まれる

### 3.8 高速C<sub>2</sub><sup>+</sup>イオン衝突による炭素薄膜からの二次電子放出

原子力機構・先端基礎：高橋康之、鳴海一雅、石川法人、須貝宏行  
 原子力機構・高崎研：千葉敦也、斎藤勇一、山田圭介  
 京都大院・エネ科、原子力機構・先端基礎：前田佳均

#### 1. はじめに

Bohr 速度  $v_0$  ( $2.19 \times 10^6$  m/s) 以上の高速クラスターイオンと固体との衝突では、単原子イオン衝突の重ね合わせとは異なる衝突物理現象が発現する。これは固体と同程度の高い粒子数密度をもつクラスター構成原子と局所微小領域の固体内原子との同時衝突、すなわち時間的 ( $\sim 10^{-17}$  s)・空間的 ( $\sim \text{\AA}$ ) に近接した多原子衝突によるエネルギー付与に起因し、近接効果 (vicinage effect) と呼ばれる。 $n$  原子クラスターイオンの構成原子あたりの衝突反応量  $X_n/n$  と、等速度の単原子イオンの衝突反応量  $X_1$  の比  $R_n = X_n/nX_1$  によって、近接効果の発現 ( $R_n \neq 1$ ) を定量的に評価することができる。

高速クラスターイオン衝突による固体からの二次電子放出の近接効果研究は、40~300 keV/u の  $H_n^+$  [1] と  $C_n^+$  [2,3] を用いた二次電子収量測定が行われており、 $R_n = \gamma_n/n\gamma_1 < 1$  となる二次電子放出が抑制される近接効果が観測されている。高速イオンの固体衝突による二次電子放出は、①固体内電子の励起過程、②表面への輸送過程、③表面障壁の透過過程からなる3ステップモデルによって説明される。しかし、これらの結果は電子励起過程に起因する近接効果だけでは説明がつかず、輸送過程や透過過程にも起因する可能性が指摘されているが、詳細な発現機構の解明には至っていない。

これまでに、原子数や標的膜厚といった実験パラメータによる近接効果の評価が行われているが、近接効果において最も基本的で重要な核間距離による系統的评价は行われていない。クラスターイオンは、クーロン爆発により解離イオン間の核間距離を広げながら標的の中を通過するため、膜厚の増加と共に近接効果の消失が予想される。しかし、二次電子放出の近接効果が消失するしきい膜厚は、これまでに測定されておらず、近接効果が発現する特性相互作用長を見積もる指標となるしきい核間距離も評価されていないのが現状である。

そこで本研究では、二次電子放出の近接効果の発現機構を明らかにするため、しきい膜厚を同定した上で、近接効果を核間距離の関数として評価することを研究目的とした。

#### 2. 実験

解離イオン間の核間距離を広く変えた測定を行うため、1.4~150  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  (70~7500  $\text{\AA}$ ) の膜厚が大きく異なる自己支持型アモルファス炭素薄膜標的を用いた。またクラスターイオンとして、核間距離

を評価する上で解析的取り扱いが可能である C<sub>2</sub><sup>+</sup>イオン (62.5~250 keV/u,  $1.6v_0 \sim 3.2v_0$ ) を用いた。 $\sim 150$  c/s 程度まで強度を減少させた C<sub>2</sub><sup>+</sup>イオンを、散乱槽内にビーム軸に対して 45°傾けて設置した薄膜標的へ入射した。

図1に本研究で使用した前方後方二次電子収量同時測定システムを示す。薄膜表面から放出された二次電子は、薄膜の前後に設置した2つのマイクロチャンネルプレート検出器 MCP-1 と MCP-2 により、イオン1個が入射する度に各々前方、後方放出二次電子として検出される。高エネルギー $\delta$ 電子も含めて全ての放出二次電子を検出するため、MCP 検出器の入力側には+700V を印加した。測定システムで得られた放出二次電子の個数分布より、二次電子放出数の最確値を二次電子収量  $\gamma$  と定義した。このような C<sub>2</sub><sup>+</sup>イオンの衝突毎の同時測定により、前方及び後方二次電子収量  $\gamma_2$  を求めた。また近接効果を定量する際の基準となる二次電子数として、等速度の C<sup>+</sup>イオンを用いて同様に二次電子収量  $\gamma_1$  を測定した。二次電子収量の近接効果は、二次電子収量比  $R_2 = \gamma_2/2\gamma_1$  により評価した。

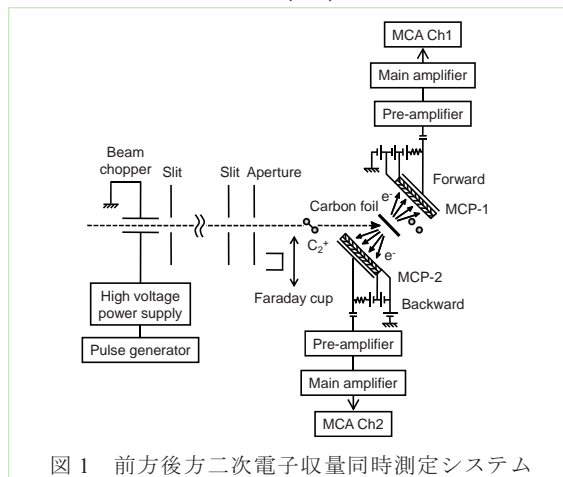


図1 前方後方二次電子収量同時測定システム

#### 3. 結果と考察

図2(a)に 62.5-250 keV/u の C<sub>2</sub><sup>+</sup>イオン衝突による後方二次電子収量比  $R_2$  の膜厚依存性を示す。二次電子の脱出長に起因して、各速度で膜厚に依存しないほぼ一定の  $R_2 < 1$  の近接効果が観測された。

図2(b)に 62.5-250 keV/u の C<sub>2</sub><sup>+</sup>イオン衝突による前方二次電子収量比  $R_2$  の膜厚依存性を示す。62.5 keV/u では最小膜厚 1.4  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  で顕著な近接効果が観測された。これは非常に薄い膜厚では、解離イオン間にクーロン斥力が作用する時間が短い

ため、薄膜射出時における核間距離が非常に小さいことに起因している。膜厚の増加に伴い、62.5keV/u では膜厚 61~150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  において近接効果の消失 ( $R_2=1$ ) が観測され、そのしきい膜厚が 14~61 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  に存在することが明らかとなった。これは膜厚が増加するにつれて、解離イオン間にクーロン斥力が作用する時間が長くなり、核間距離が増大し、次第に孤立単原子イオンとして薄膜中を通過するためである。

166.7keV/u と 250keV/u では膜厚の増加に伴い近接効果が減少する傾向がわずかに見られたが、最大膜厚 150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  でも近接効果の消失を観測することはできなかった。さらに速度の増加と共に、しきい膜厚が増大することから、しきい膜厚に速度依存性があることがわかった。

前方二次電子収量の近接効果を核間距離で評価するため、クーロン力を考慮した軌道計算により薄膜射出時の解離イオン間の核間距離を導出した。計算では炭素標的のプラズマ周波数  $\omega_p$  を  $h\omega_p/2\pi=23\text{eV}$ 、 $\text{C}_2^+$ イオンの初期核間距離を 1.27 $\text{\AA}$ 、イオン間ポテンシャルとして遮蔽クーロンポテンシャル  $\Phi(r)=(Z_1Z_2e^2/r)\exp(-r/a)$  を適用した。 $Z_1e$  と  $Z_2e$  は薄膜中での解離イオンの電荷であり、 $a$  は  $a=v/\omega_p$  ( $v>v_F$ ) と  $a=v_F/\omega_p$  ( $v<v_F$ ) で与えられる電荷の遮蔽長である。 $v$  はイオンの速度、 $v_F$  は Fermi 速度である。また標的中のイオンの速度と電荷として、単原子イオンの阻止能を取り入れた速度と速度に対応した単原子イオンの平均電荷を用いた。

図 3 に標的出口における解離イオン間の核間距離に対してプロットした前方二次電子収量比  $R_2$  を示す。62.5keV/u では核間距離が 23 $\text{\AA}$  より大きくなると近接効果は消失し、そのしきい核間距離が 6~23 $\text{\AA}$  に存在することが明らかとなった。

3 ステップモデルの電子励起過程に相当するエネルギー損失の近接効果は、この速度領域では数

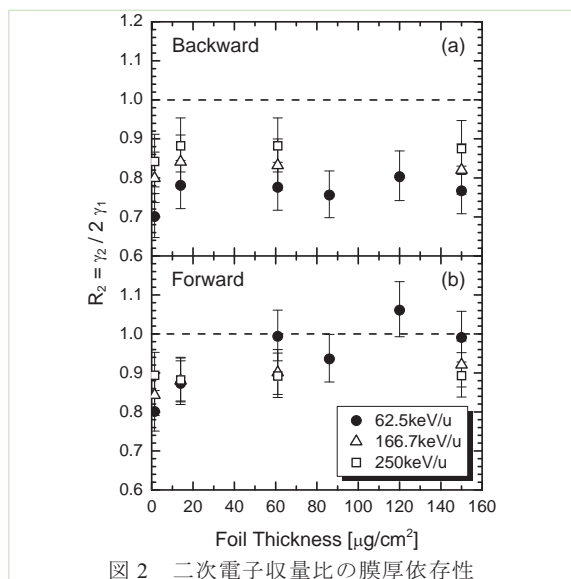


図 2 二次電子収量比の膜厚依存性

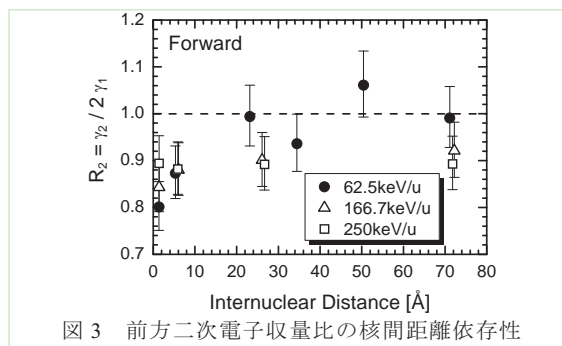


図 3 前方二次電子収量比の核間距離依存性

Å 程度で消失することが報告されている[4]。よって、この結果はエネルギー損失の近接効果が消失する核間距離よりも大きい核間距離では、電子励起過程以外の輸送過程や透過過程に起因して二次電子収量の近接効果が発現することを意味する。

さらに近接効果が消失するしきい核間距離は、速度の増加と共に増大することから、近接効果はイオンの速度にも依存することがわかった。この速度領域では、イオンの速度の増加に伴い、標的中のイオンの電荷も増加する。よって、このようなしきい核間距離の速度依存性は、イオンの電荷状態に起因する可能性が考えられる。

実験結果に基づく近接効果の発現機構として、解離イオンの一方で生成された二次電子が輸送過程において、別の解離イオンの電荷に応じて誘起されるポテンシャルにより捕獲（トラックポテンシャル）もしくは散乱（ウェイクポテンシャル）される二次電子放出の抑制モデルを検討した。

膜厚 150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  の標的出口での核間距離が $\sim 70$  Å に達しても近接効果が観測された 250keV/u の  $\text{C}_2^+$ イオンに対して、どちらの場合も 20eV 以下の低エネルギー二次電子がポテンシャルの寿命 ( $6\times 10^{-17}\sim 4\times 10^{-16}\text{s}$ ) の間に移動する距離 (1~15Å) は十分小さく、従来の近接効果の時空間スケールを仮定したモデルでは、実験結果を説明することはできない。しかし寿命が $\sim 10^{-15}\text{s}$  もしくは応答距離が $\sim 70\text{\AA}$  の時空間条件が起こり得るならば、解離イオンの一方で励起された 20eV 以下の二次電子が、輸送過程で別の解離イオンによって誘起されるポテンシャルと相互作用する可能性がある。特に輸送過程におけるポテンシャルの影響は  $\text{C}_2^+$ イオンの配向の違いにより変化することが予想される。今後、二次電子収量の近接効果の配向依存性を実験的に明らかにする予定である。

References

[1] A. Billebaud et al., *Nucl. Instr. and Meth. B* **112** (1996) 79.  
 [2] H. Kudo et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **45** (2006) L565.  
 [3] S. Tomita et al., *Phys. Rev. A* **73** (2006) 060901R.  
 [4] M. F. Steuer et al., *Nucl. Instr. Meth.* **194** (1982) 277.

2009/3/16  
 連携重点研究クラスターグループ会議

# 高速炭素クラスターイオン衝突による 炭素薄膜からの二次電子放出の研究

先端基礎研究センター  
 極限環境場物質探索グループ  
 高橋康之

## 研究の背景と目的 1

### 高速クラスターイオンの固体衝突

固体と同程度の高い粒子数密度をもつ構成粒子と局所微小領域の固体原子の同時衝突

時間スケール  $\sim 10^{-17}$ s    ↓    空間スケール  $\sim \text{\AA}$

単原子イオン衝突の重ね合わせとは異なる衝突効果の発現

近接効果  $R_n = \frac{X(n)}{nX(1)} \neq 1$

< 阻止能、電荷状態、二次粒子放出、損傷効果など >

高速クラスターイオン → 固体内電子にエネルギー付与  
 励起電子の挙動の解明 → エネルギー付与過程の解明



研究目的

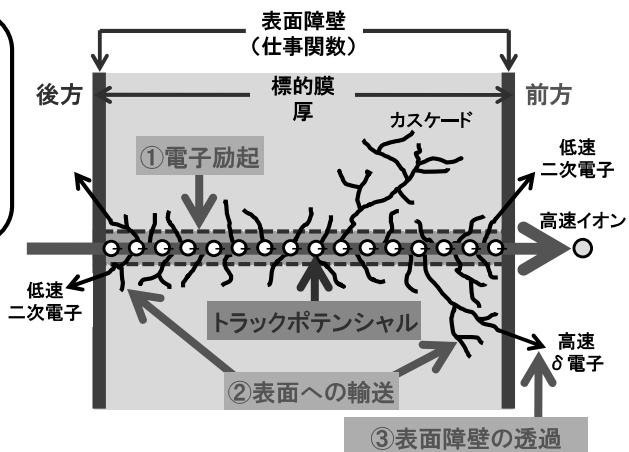
二次電子放出の近接効果の発現機構を解明する

## 研究の背景と目的 2

### 高速イオン衝突による二次電子放出現象

#### 3ステップモデル

- ①電子励起過程
- ↓
- ②表面への輸送過程
- ↓
- ③表面障壁の透過過程



二次電子収量  $\gamma$  [個/ion]  
 入射イオン1個あたりに放出される二次電子の個数

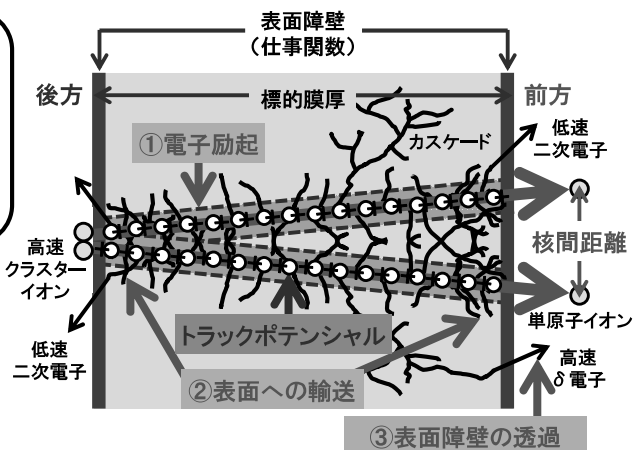
## 研究の背景と目的 3

### 高速クラスターイオン衝突による二次電子放出現象

#### 3ステップモデル

- ①電子励起過程
- ↓
- ②表面への輸送過程
- ↓
- ③表面障壁の透過過程

近接効果はどの段階で生じるのか？

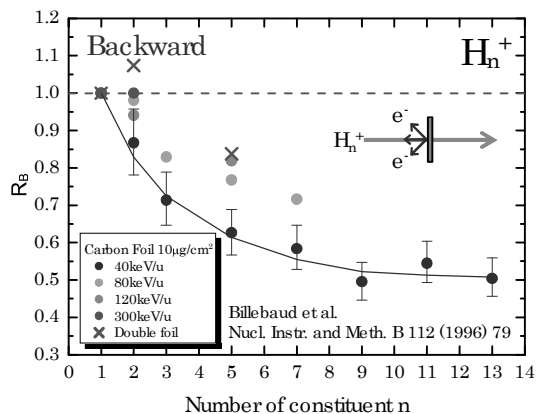


**核間距離が最重要！**

## 研究の背景と目的 4

### 二次電子放出の近接効果研究の現状

$H_n^+$ と $C_n^+$  (40~300keV/u)で二次電子収量 $\gamma$ について $R_n < 1$ が観測されている



### 問題点

近接効果が核間距離で記述できていない

## 研究手法

### 薄膜の前方及び後方に放出される二次電子収量の同期測定

● 高速クラスターイオン

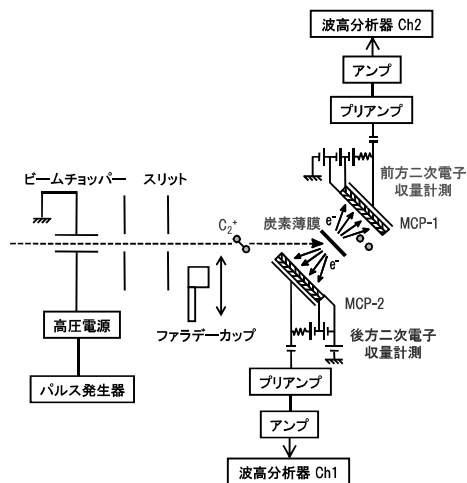
$C_2^+$ ,  $C_3^+$ ,  $C_4^+$   
(0.75~3.0MeV/atom,  $1.6v_0 \sim 3.2v_0$ )

● 前方後方二次電子収量同期測定システム

マイクロチャンネルプレート(MCP)検出器による測定

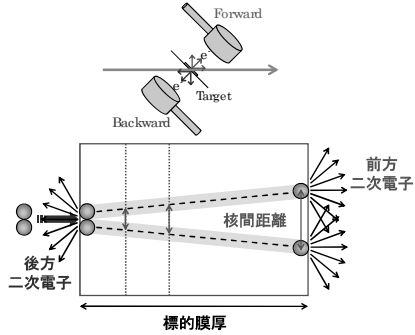
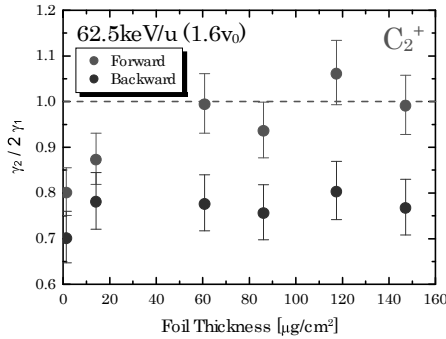
● 固体薄膜標的

アモルファス炭素薄膜  
( $1.4 \sim 147.1 \mu g/cm^2$ ,  $70 \sim 7350 \text{ \AA}$ )



## C<sub>2</sub><sup>+</sup>の二次電子収量比 1

### 標的膜厚の関数として近接効果を評価

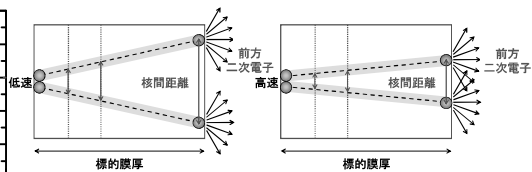
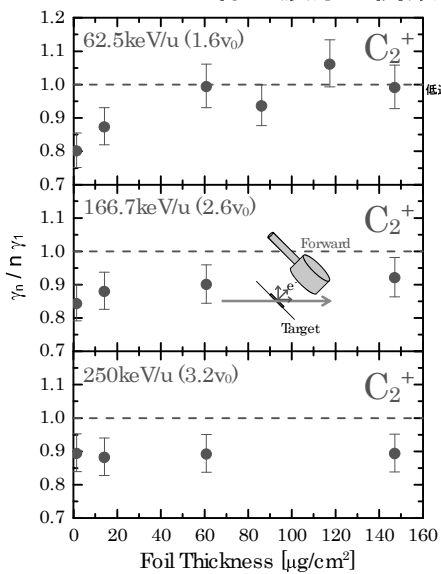


前方	後方
● 薄い膜 近接効果の増大( $R_2 < 1$ )	● 薄い膜 近接効果の増大( $R_2 < 1$ ) 二次電子脱出長は $\sim 500 \text{ \AA}$ ( $10 \mu\text{g/cm}^2$ )以下
● 厚い膜 近接効果の消失( $R_2 = 1$ ) $\sim 5000 \text{ \AA}$ ( $100 \mu\text{g/cm}^2$ )	● 厚い膜 膜厚よらず近接効果は一定( $R_2 < 1$ )

二次電子収量の近接効果は核間距離で説明できる

## C<sub>2</sub><sup>+</sup>の二次電子収量比 2

### 標的膜厚の関数として近接効果を評価

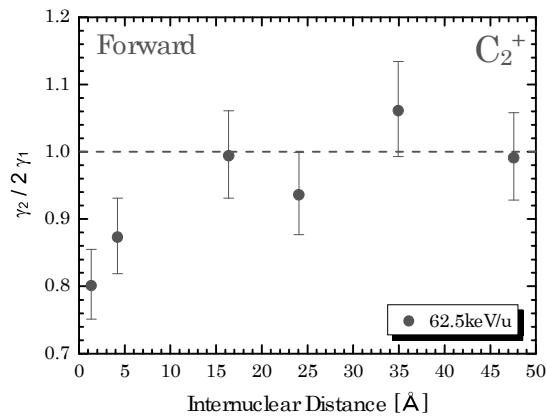


前方  
62.5keV/u  
膜厚の増加に伴う近接効果の消失( $R_2 = 1$ )

さらに高速にすると  
膜厚の増加に伴う近接効果の減少( $R_2 < 1$ )  
同一膜厚では近接効果増大

二次電子収量の近接効果は核間距離で定性的に説明できる

### 二次電子収量比の核間距離依存性 1



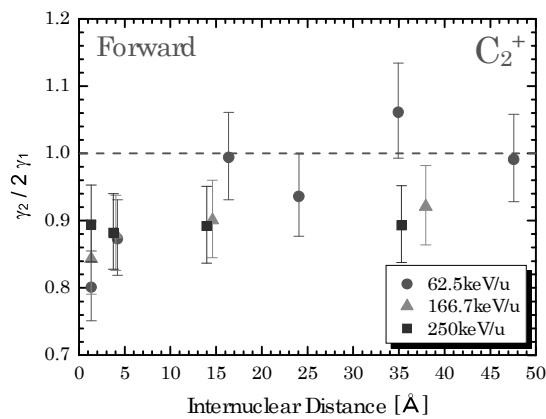
核間距離 $\sim 30$  Å で近接効果は消失

電子励起過程の近接効果は核間距離 $\sim$  Å で消失

二次電子放出の近接効果は電子励起過程以外にも起因

→ 輸送過程?

### 二次電子収量比の核間距離依存性 2



近接効果が消失する核間距離の閾値は速度にも依存

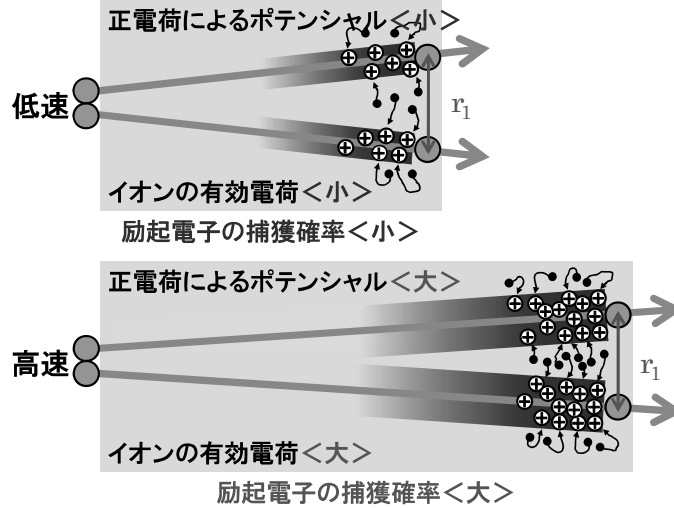
147.1 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$		
入射エネルギー [keV/u]	出射エネルギー [keV/u]	平均電荷
62.5	15.2	0.93
166.7	88.9	2.19
250	162.4	2.87

イオンの電荷にも起因?



### 輸送過程での近接効果の発現機構(モデル)

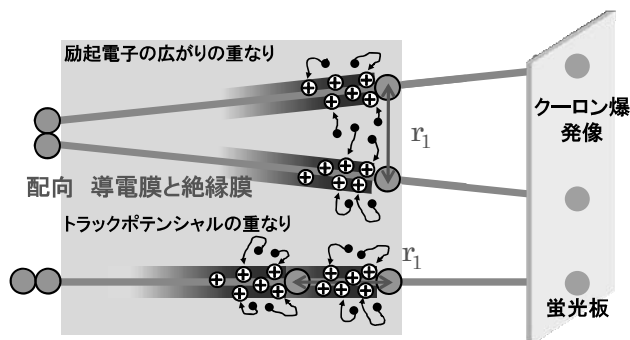
速度の違いによる近接効果が消失する核間距離の閾値の差



トラックポテンシャルによる励起電子の捕獲の可能性

### 今後の研究展開

励起電子の輸送過程に起因する近接効果の機構の解明



**検証方法**

- ①配向の違い
- ②導電膜と絶縁膜による二次電子収量測定



**実験方法**

二次電子収量とクーロン爆発イメージの同期測定

### 3.9 高速クラスターイオン照射による標的電子励起の非線形効果

#### Nonlinear Effect of electric excitation in a target by swift cluster ion irradiation

岡山理科大学 理学部 金子 敏 明

##### 1. 研究の背景

近年、MeV 領域のエネルギーをもつクラスターイオンビームが実験に利用できるようになり、標的物質におけるエネルギー付与など電子励起過程の研究が盛んになってきた。クラスターイオンビームは、従来の単原子イオンビームと比べて、1) 狭い空間領域に高密度でイオンを照射できる、2) チャージアップ効果を抑制できる、3) 粒子あたりの運動エネルギーを下げるができる、などの利点をもつ。一方、ビームの特性としては、電荷や速さに加えて、粒子数や空間構造など新たなパラメーターが加わったため、それらが電子励起過程にどのように関連するのか新たな興味湧いてくる。この背景には、多くの粒子による時間空間的に相関を持った電子励起というクラスタービーム独特の効果が存在するからである。この効果は、エネルギー損失量、二次電子収量、平均電荷量などに見られる。いま、N 個の同種粒子からなるクラスターイオンを照射したときに得られる粒子 1 個あたりの量を  $Y(N)$  とする。これと同じ速さの 1 個のイオン照射での量  $Y(1)$  とを比較する。量  $Y$  が平均電荷量であれば、エネルギーに関わらず、 $Y(N) < Y(1)$  であり、イオン間距離が増加するにつれて  $Y(N)$  は  $Y(1)$  に近づく。理論的には、空間構造によっても平均電荷の値が異なる[1-2]。また、2) 1 粒子あたりの平均エネルギー損失値  $\Delta E(N)$  は、入射の速さがボーア速度の 2 倍程度よりも小さいときには  $\Delta E(1)$  よりも小さいが、それ以上の速さになると  $\Delta E(1)$  よりも大きくなる[1]。さらに、3) カイネティック放出過程での 2 次電子収率  $\gamma(N)$  は、0.5 MeV/atom 程度以下の入射エネルギーでは、 $\gamma(1)$  よりも予想以上に小さくなる[3-6]。

また、クラスターのクーロン爆発の角度分布の理論的予測にも着手している。このように、高速クラスターイオン照射における電子励起過程に関して、新たな知見の獲得や未解明現象の解明など素過程研究の立場から広範な理論研究を行っている。

##### 2. 理論解析

###### 2. 1 クラスター平均電荷

1 原子あたり MeV 領域のエネルギーを持つクラスターイオンが固体標的を通過する際に、固体内でのクラスター構成粒子個々の平均電荷を流体モデルに基づいた統計的理論評価式を提案した。原子番号  $Z$  の同種粒子から成るクラスターにおいて  $i$  番目の粒子の平均電荷  $Q_i$  は

$$\frac{Q_i}{Z} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{y_i} dt \exp(-t^2) \quad , \quad y_i = \sqrt{\frac{3}{8}} \frac{V}{V_{b,i}}$$

$$V_{b,i} = \left[ 1.092Z^{4/3} + \sum_{j(\neq i)} \frac{2Q_j}{R_{ji}} \right]^{1/2} V_0$$

で決定される。 $R_{ji}$  は  $j$  番目と  $i$  番目の粒子間距離である。この式からわかるように、各粒子の平均電荷は、自分以外の粒子の平均電荷と相対距離によって決まるので self-consistent にきめなければならない。千葉らは、3 MeV の C3+ のクラスターイオンを炭素薄膜に透過させて解離イオンの平均電荷を測定して、空間構造と平均電荷の相関を調べた。その結果、線状構造が三角構造よりも平均電荷が大きいこと、および線状構造では、中心位置にあるイオンよりも両端にあるイオンのほうが大きな平均電荷をもつことを、シミュレーションを利用した実験解析で示した。これに対して、われわれの理論

計算では、概ね一致する結果を得た。これは、千葉らの実験結果を支持するものであった。なお、この理論計算では、固体内でのエネルギー損失と固体内で誘起される電子の分極力の影響を取り入れている。

## 2. 2 エネルギー損失

炭素クラスターイオンが炭素膜を通過したときのエネルギー損失において、入射速度が 1 MeV 程度以下では負のクラスター効果が現れることが予言されていた。前項の平均電荷理論を用いて、固体媒質中でのクラスター構成原子の平均電荷を決定し、0.5 MeV/atom の入射エネルギーをもつ線状構造の炭素クラスターイオンに対する運動方程式を数値的に解くことによって各粒子のエネルギー損失量を評価した。工藤らの実験では、同じ速度の単一の炭素イオンに対して約 5 パーセント程度小さい値を示した。これを理論的に確かめるため、物質中での遮蔽されたクーロン斥力と伝導電子の分極力、および電子励起による抵抗力を考慮して計算した。なお、各イオンは点電荷ではなく、統計的に決められた電子雲をもつ非点電荷として扱っている。このとき、各粒子の電荷（フーリエ空間における電荷）は

$$\rho_1(\mathbf{k}) = Z - \rho_{i,e}(\mathbf{k})$$

$$\rho_{i,e}(\mathbf{k}) = N_i \sum_{j=1}^3 \frac{\alpha_j \beta_j^2}{\beta_j^2 + \Lambda^2 k^2}$$

で与えられる。ここで

$$\alpha_1 = 0.10, \alpha_2 = 0.55, \alpha_3 = 0.35$$

$$\beta_1 = 6.0, \beta_2 = 1.20, \beta_3 = 0.30$$

である。また、 $\Lambda$  は電子雲の空間的大きさを表わす。もしも  $\Lambda = 0$  ならば、 $\rho_1(0) = Z - N_i = Q_i$  となって点電荷の値になる。

固体中の電子は、電子ガスモデルで記述し、その動的応答はリントハルトの誘電関数  $\epsilon(\mathbf{k}, \omega)$  で表わされると考えた。速度  $\bar{V}$  の 1 個の非点電荷に対しては、電子ガスの抵抗力（阻止能）は

$$S = \frac{1}{2\pi^2 V} \int \frac{d^3 k}{k^2} |\rho_{\text{ext}}(\mathbf{k})|^2 \times \int d\omega \omega \Im \left[ \frac{-1}{\epsilon(\mathbf{k}, \omega)} \right] \delta(\omega - \bar{k}\bar{V})$$

となり、誘電関数の虚部が本質的な役割を演ずる。ここで  $\rho_{\text{ext}}(\mathbf{k})$  はフーリエ空間におけるイオンの電荷で  $\rho_1(\mathbf{k})$  と実質的に同じである。以下、いくつかの例で計算結果を示す。

まず、0.5 MeV/atom のエネルギーで炭素薄膜を通過した炭素イオンの平均電荷とエネルギー損失量の膜厚依存性を図 1 と図 2 に示した。エネルギーが減少するにつれて平均電荷も単調に減少することがわかる。

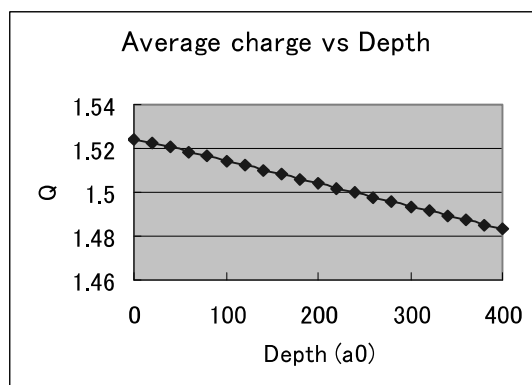


図 1 : 炭素薄膜を通過する 0.5 MeV 炭素イオンの平均電荷の膜厚依存性

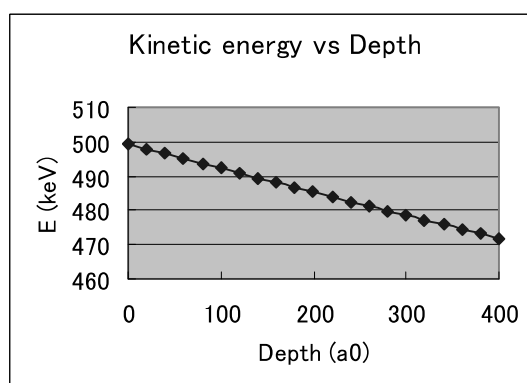


図 2 : 炭素薄膜を通過する 0.5 MeV 炭素イオンの運動エネルギーの膜厚依存性

次に、0.5 MeV/atom の  $C_n (n=1 \sim 6)$  クラスターのエネルギー損失量と平均電荷を計算した。

炭素クラスターは隣接原子間の間隔がほぼ  $2.4 a_0 (=1.27 \text{ \AA})$  であることが知られているので、この値を採用し、空間構造は線状であると仮定した。入射方向と配向方向との相関を調べた結果、平均電荷は進行方向に対してクラスターの軸が垂直になると平均電荷が大きくなる。また、このときエネルギー損失量も最大になることがわかった。配向依存のエネルギー損失量を、配向に対する重みをつけて平均することにより、配向によらない量すなわち実験で比較しやすい量を導出できる。

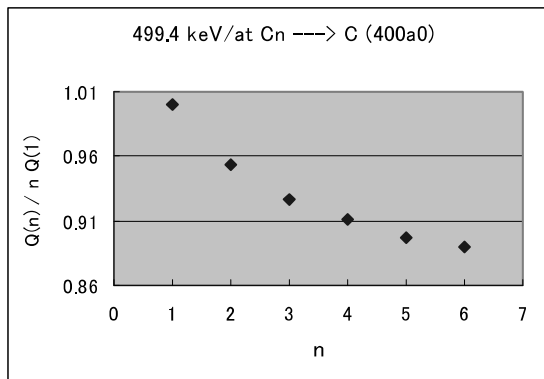


図3：平均電荷比のクラスター粒子数依存

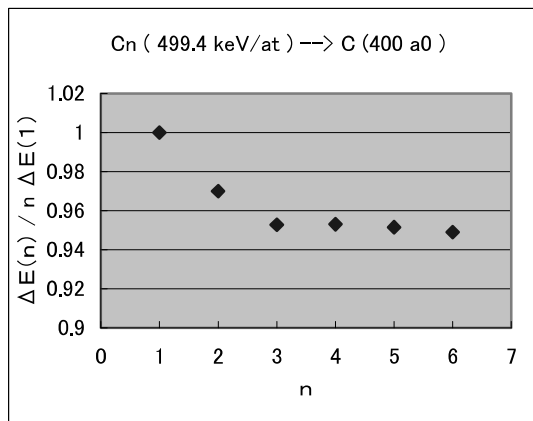


図4：エネルギー損失比のクラスター粒子数依存

図3と図4は  $n=1 \sim 6$  までのクラスターに対する平均電荷とエネルギー損失を、同じ速さの単一炭素イオン入射の対応量に対して比をとったものである。図3はまだ実験データがないために比較できないが、平均電荷が粒子数の増加とともに減少するという傾向は、高エネルギー

(1 - 2 MeV) での実験データの傾向と同じであることがわかった。また、図4のエネルギー損失の計算値は、最近、筑波大学の工藤氏のグループが報告した実験データと大変よく一致していることが判明した。

### 2. 3 解離イオンの荷電状態と角度分布

6 MeV の  $C_2^+$  クラスターイオンが膜厚  $1 \mu g/cm^2$  の炭素薄膜を通過したあとの荷電状態の組み合わせと角度分布との相関を調べる実験が千葉らによって行なわれた。われわれは、流束保存則と重心系と実験室系での速度の変換公式に基づいて、実験室系での2粒子の角度  $\theta$  分布がサイン分布に従うことを理論的に示した。炭素クラスターの場合には角度が mrad になるため、散乱角に比例する分布となる。分布の最大散乱角はクーロン爆発での電荷の組み合わせと初期の粒子間距離で決まる。千葉らの実験データによれば、ばらつきはあるが最大散乱角まではほぼ直線的に増加する。最大散乱角付近では、多重散乱の影響のためより大きな角度まで分布がテールを引くが、このこともほぼ理論的に説明できることがわかった。

最近、クラスター衝撃で誘起される2次電子収量の sub-linear な現象[4-6]に関して理論的な結果を得たことを付記したい。

最後に、原子力機構高崎量子応用研究所の斉藤勇一氏らのグループ、筑波大学の工藤博氏らのグループなど関連研究者に深謝する。また、この研究で受けた科学研究費補助金(基盤研究(C))のサポートにも感謝する。

### 参考文献

- [1] T. Kaneko, PRA 66 (2002) 052901
- [2] A. Chiba et al., PRA 76 (2007) 063201
- [3] T. Kaneko et al., JPSJ 75 (2006) 034717
- [4] H. Kudo et al., JJAP 45(2006)L565
- [5] S. Tomita et al., PRA 73(2006) 060901
- [6] H. Kudo et al., Vacuum (2009) (in print)

# 高速クラスターイオン照射による標的電子励起の非線形効果

Non-linear effect in electron excitation induced by fast cluster ion beams

岡山理科大学 理学研究科 金子敏明  
Okayama univ. of Science T. Kaneko

## イオンビームの高度化と先進利用

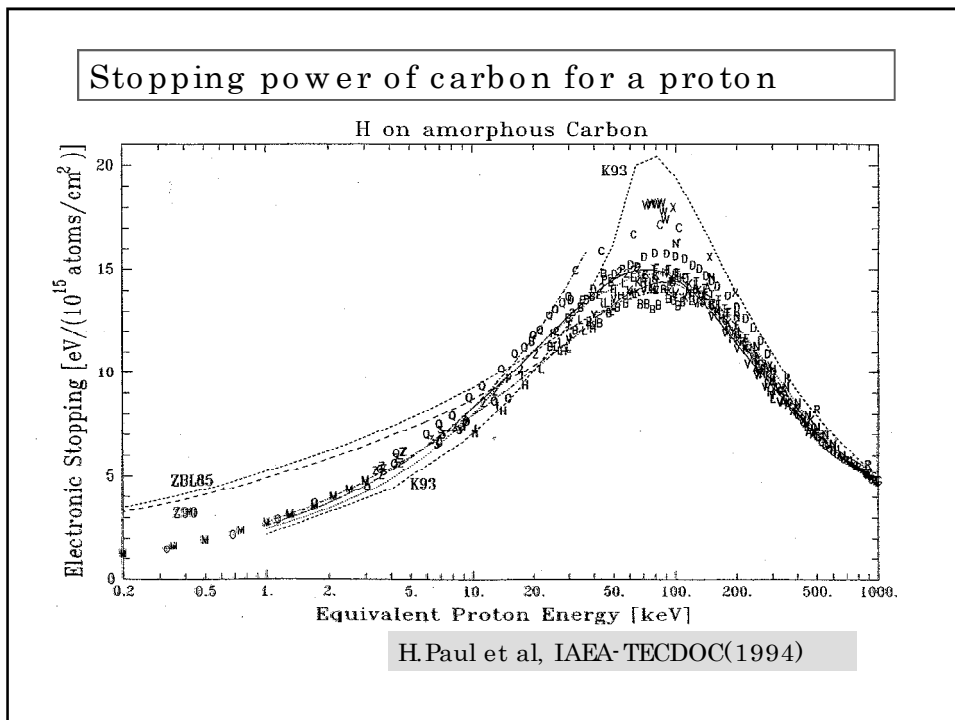
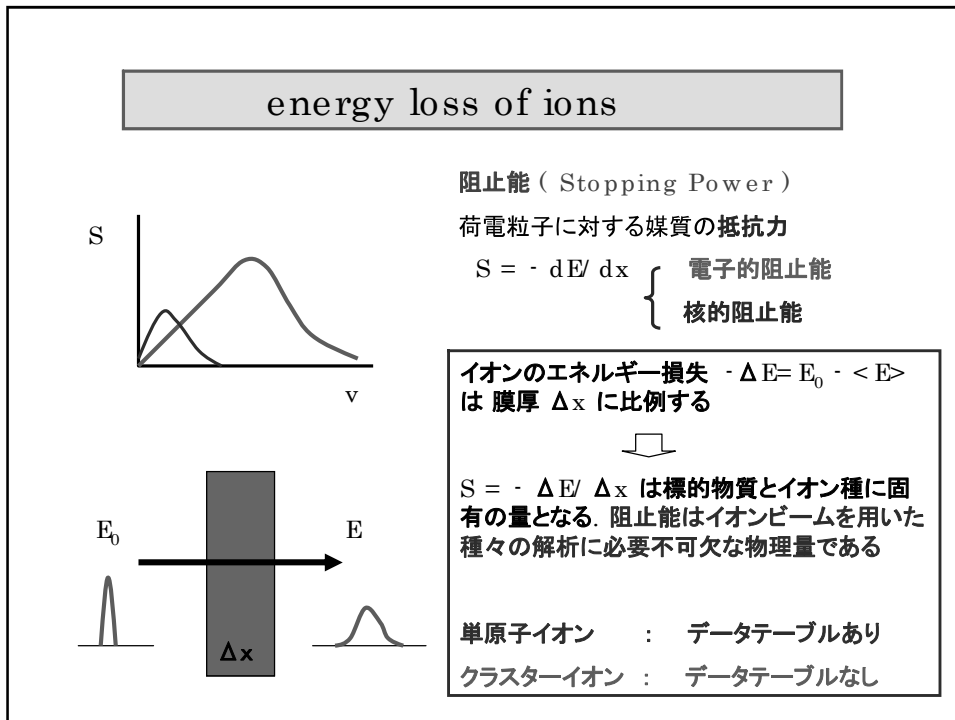
### 応用分野

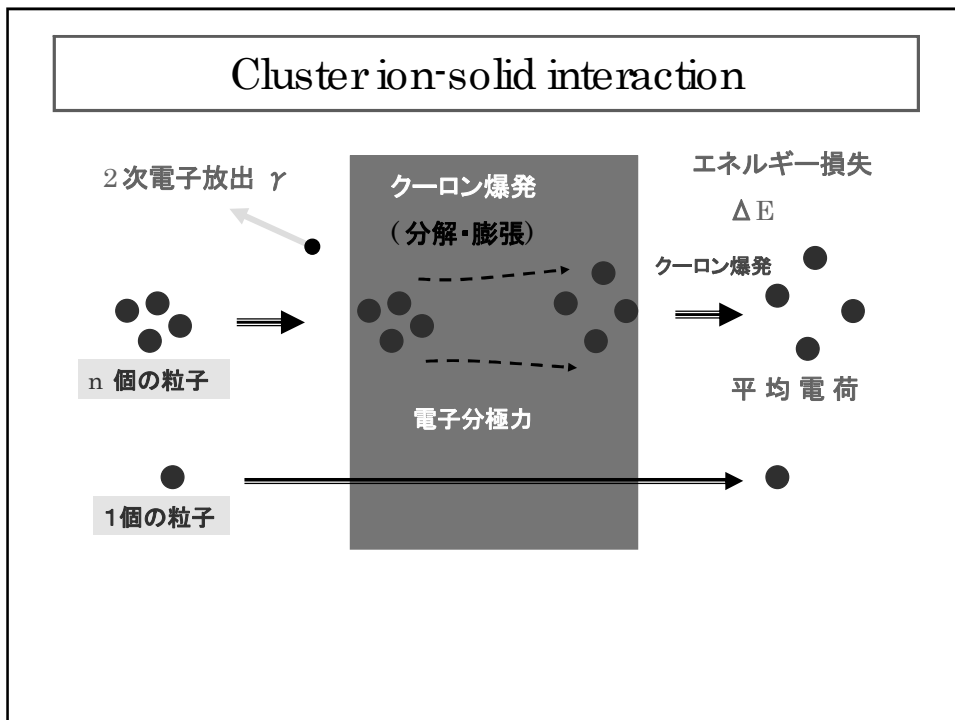
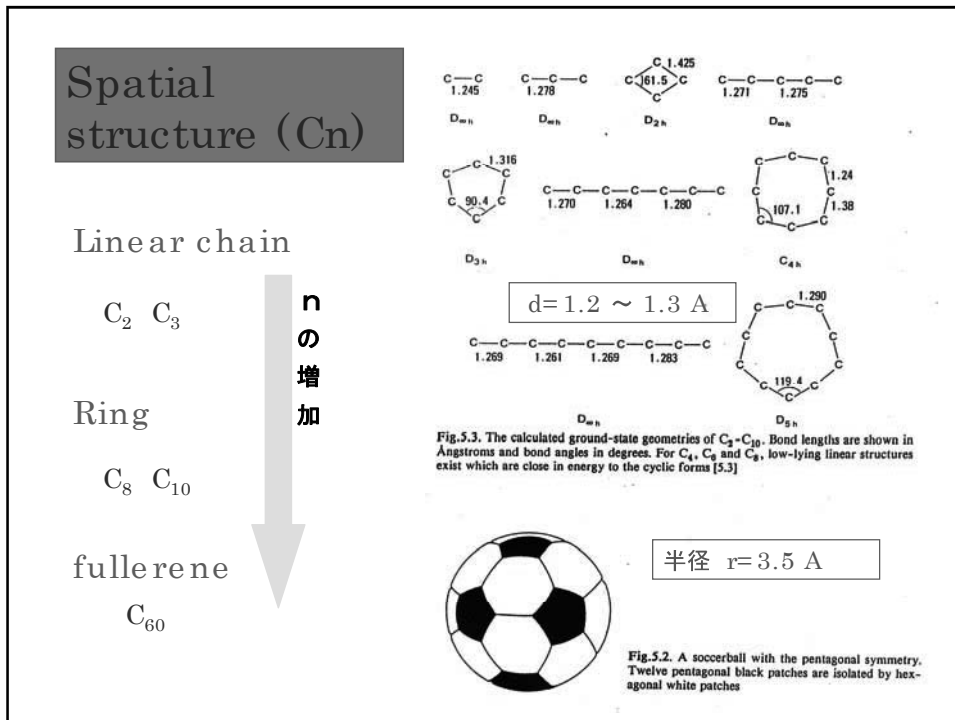
- ・ 医療、半導体、生物応用、加工
- ・ 宇宙線の利用

### イオンビームを特徴づけるパラメター

- ・ 点電荷……速さ( $v$ )、電荷( $Z$ )
- ・ 非点電荷…… $v$ ,  $Z$ , 電子分布( $\rho$ ) → 遮蔽効果
- ・ クラスター…… $v$ ,  $Z$ ,  $\rho$ , 空間構造( $s$ ) → クラスター効果

(実験面)筑波大学、原研高崎TIARA





## Cluster Effect

$Y(n)$ : yield under bombardment of a cluster

$Y$ : energy-loss, average charge, secondary electron yield(e-/ion)

$$R_1 = \frac{Y(n)}{n \times Y(1)}$$

$$R_2 = Y(n)/n - Y(1)$$

Sub-linear (  $R_1 < 1$ ,  $R_2 < 0$  )

over-linear (  $R_1 > 1$ ,  $R_2 > 0$  )

◆ Average charge

sub-linear Brunelle et al. (1999)

◆ Energy-loss

sub-linear ( at lower speed ) Kudo et al.(2008)

over-linear ( at higher speed ) Baudin et al.(1994)

◆ SE emission

sub-linear ( at lower speed ) Kudo et al.(2006)

over-linear ( at higher speed )

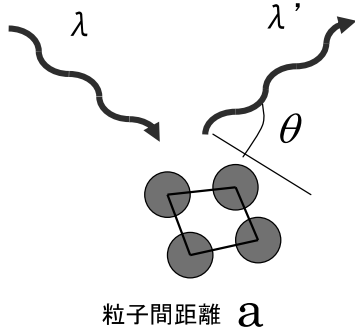
### クラスターイオンのエネルギー損失

クラスターイオン  
による電子励起



クラスター粒子  
によるコヒーレ  
ントな電子散乱

散乱波の  
干渉



運動量移送  $\hbar k$

$$k = 2\pi \sqrt{\frac{1}{\lambda^2} + \frac{1}{\lambda'^2} - 2 \frac{\cos\theta}{\lambda\lambda'}}$$

$ka \leq 1 \Rightarrow$

粒子相関 **強い**  
(クラスター効果)

$ka > 1 \Rightarrow$

粒子相関 **弱い**



**Energy transfer and momentum transfer to conduction electrons**

電子の運動量  $\vec{p} = m\vec{v}_e \implies \vec{p}' = m\vec{v}_e + \hbar\vec{k}$

電子の運動エネルギー  $E = \frac{p^2}{2m} \implies E' = \frac{p'^2}{2m} = E + \hbar\omega$

Fermi sphere

**Stopping force for a whole cluster**

- ◆ クラスタイオン  
各イオンの核電荷、束縛電子数を反映した電荷分布を導入  
配向について平均した
- ◆ ターゲット（誘電関数で記述する）
 

炭素薄膜、HOPG  
 → 4個の電子  
 → 2個の1s電子

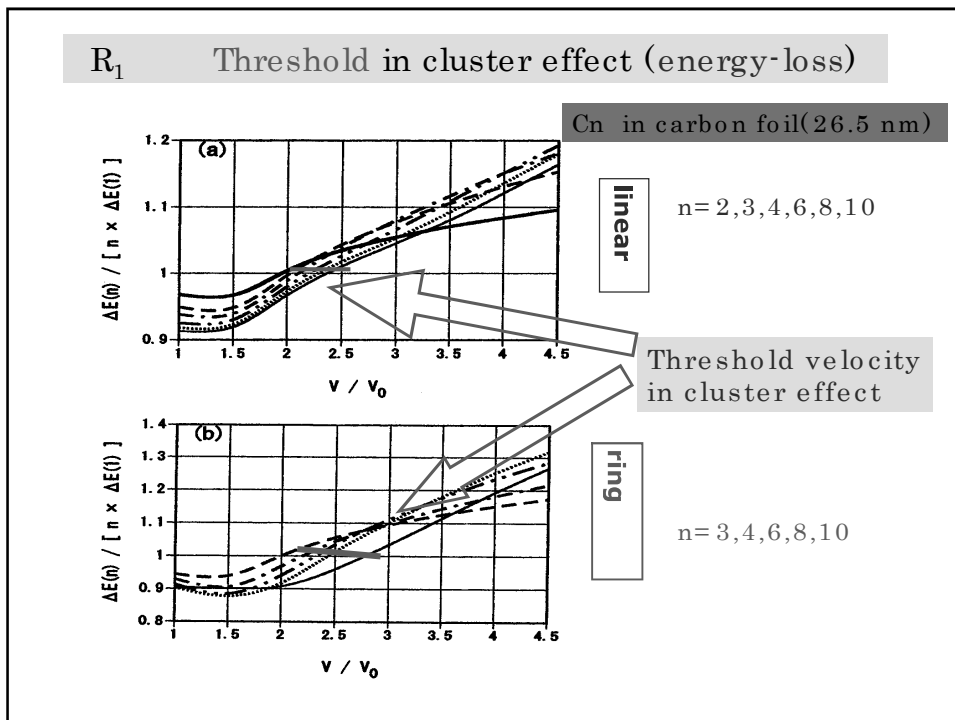
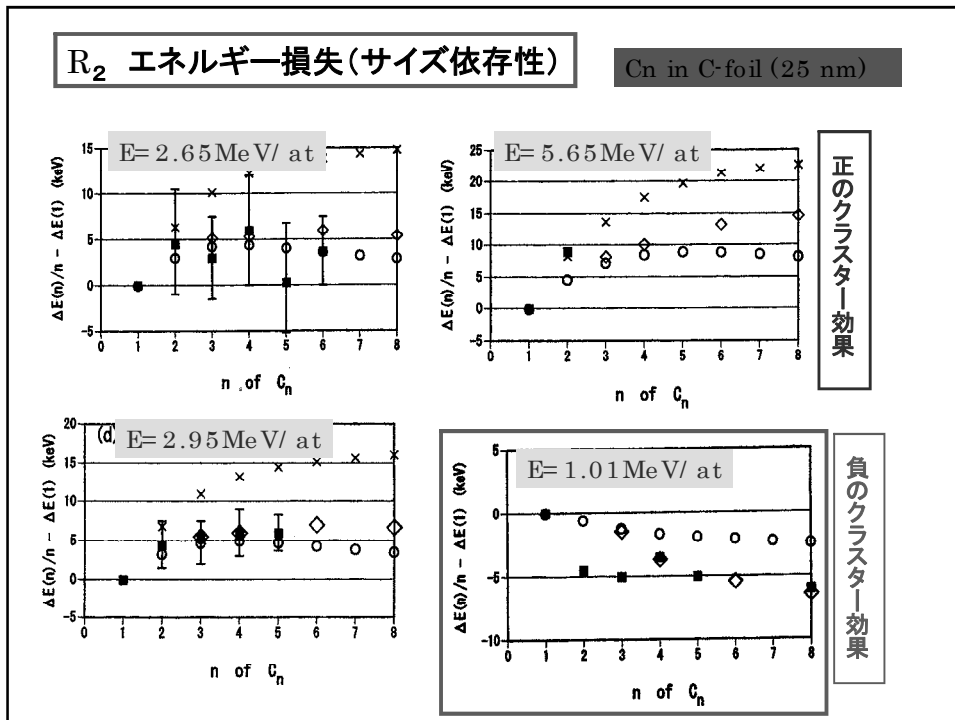
伝導電子(個別電子励起、プラズモン励起)  
 内殻電子

$$S = \frac{e^2}{2\pi^2 V} \int \frac{d\vec{k}}{k^2} \langle |\rho_{\text{ext}}(\vec{k})|^2 \rangle \int d\omega \omega \Im \left[ \frac{-1}{\epsilon(\vec{k}, \omega)} \right] \delta(\omega - \vec{k}\vec{V})$$

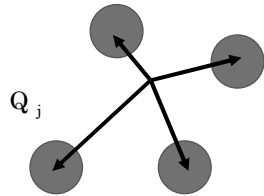
$$\langle |\rho_{\text{ext}}(\vec{k})|^2 \rangle = \sum_j \left[ \rho_j(k)^2 + \sum_{i(\neq j)} \rho_j(k) \rho_i(k) \frac{\sin(kr_{ij})}{kr_{ij}} \right]$$

$\rho_j(k) = Z_j - \rho_{j,e}(k)$

粒子相関を表す項(正にも負にもなる)  
 $r_{ij} \rightarrow \infty$  のとき独立粒子の集団になる



### Self-consistent average charge model



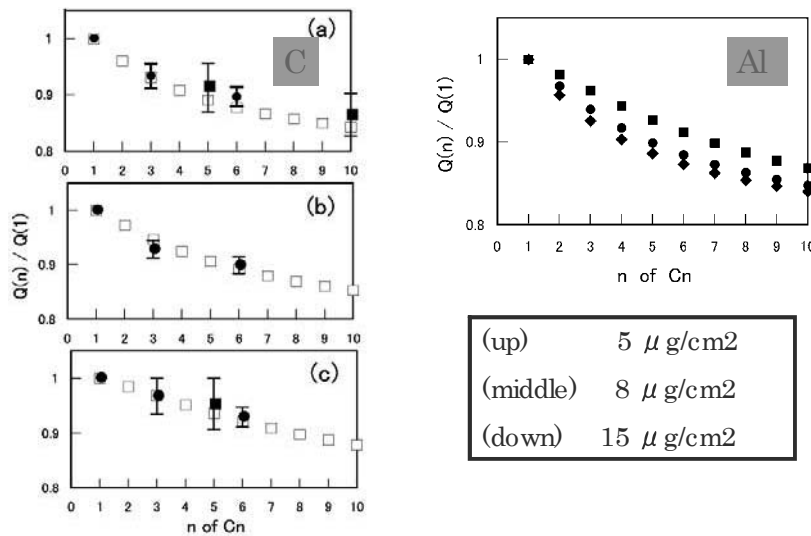
Electric field produced by surrounding ions makes the binding force stronger

$$V_{b,i} = (1.092 Z_i^{4/3} + \sum_{j(\neq i)} \frac{2Q_j}{|\vec{r}_j - \vec{r}_i|})^{1/2} v_0$$

$$\frac{Q_i}{Z_i} = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_0^{y_i} dt \exp(-t^2) \quad y_i = \left(\frac{3}{8}\right)^{1/2} \frac{V}{V_{b,i}}$$

- ◆ charges of individual ions should be determined in self-consistent manner  $Q_j = Q_j(Q_1, \dots, Q_{j-1}, Q_{j+1}, \dots, Q_n)$
- ◆ spatial structure of a cluster is included

### $R_1$ average charge ( 1 MeV/atom Cn in C and Al)



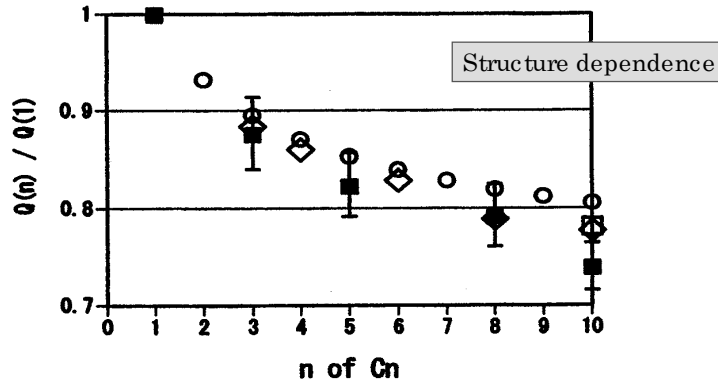
Nucl.Instr.Meth. in Phys.Res.B 258 (2007) 57

R<sub>1</sub> Average charge (size dependence)

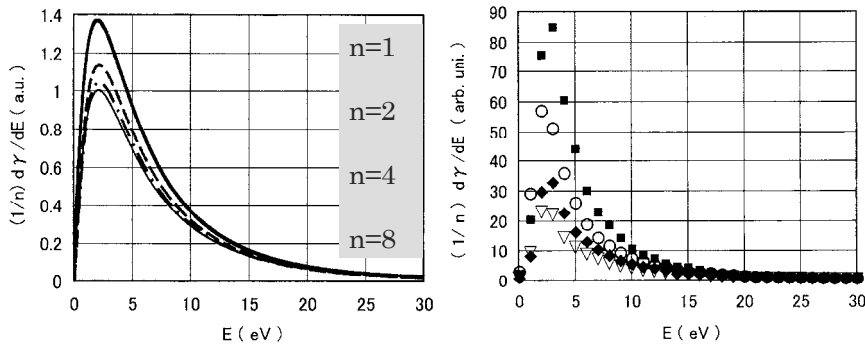
2.0 MeV/atom Cn<sup>+</sup> ⇒ 2.2 μg/cm<sup>2</sup> carbon foil

Exp) Brunelle et al., P.R.A 59(1999)4456

Cal) P.R.A 66(2002) 052901

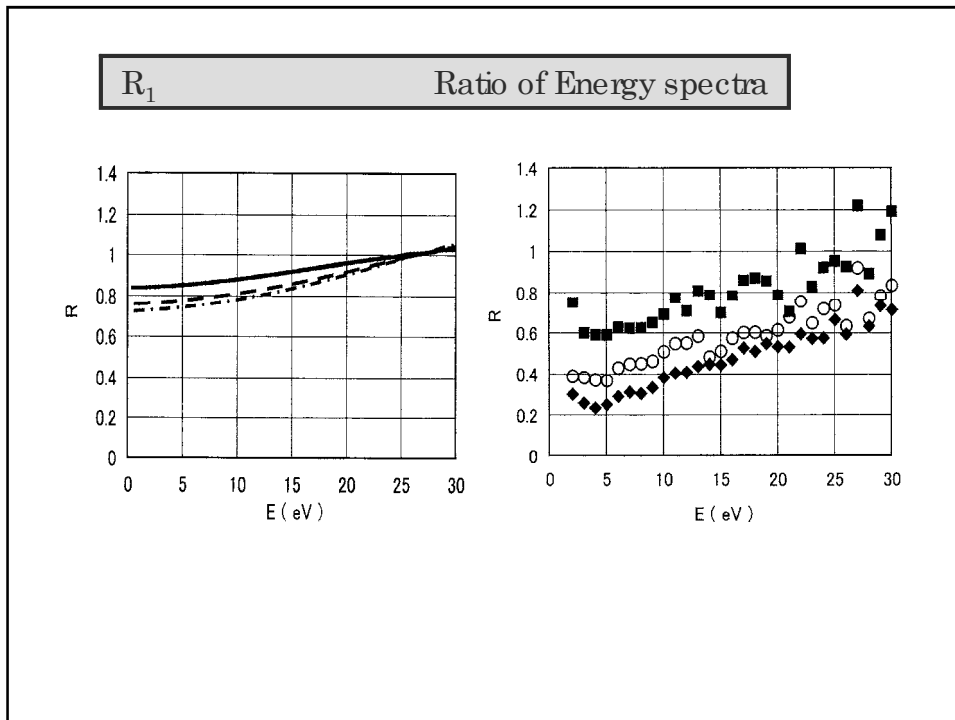


R<sub>1</sub> KEE energy spectra in vacuum



Sublinear effect is obtained. Experimental data show more suppression and narrower spectra.

Bias voltage effect?



??? Lower energy case ???

Theoretical study of inelastic energy-loss in carbon foil by carbon cluster ions with 0.5 MeV/ atom

- ◆  $V = 1.3 v_0$  ( sub-linear region in energy-loss )
- ◆ Linear structures of clusters are assumed
- ◆ Sub-linear effect in energy-loss will appear ???
- ◆ Sub-linear effect in average charge will appear ???

## M O D E L

### Projectiles

- ensemble of partially stripped isolated ions
- charges are determined using self-consistent cluster average charge theory

### Targets

- Electron gas (neglect ion cores)

### Interactions

#### (1) In a foil

- Repulsive Coulomb force
- Polarization force (dissipative + conservative)

#### (2) Out of a foil

- Repulsive Coulomb force (keep average charges)

## 最近の実験

◆ Kudo et al. (University of Tsukuba)

0.5 MeV/atom 炭素クラスター を Carbon 薄膜 に透過させて、  
エネルギー損失 における「負のクラスター効果」を観測



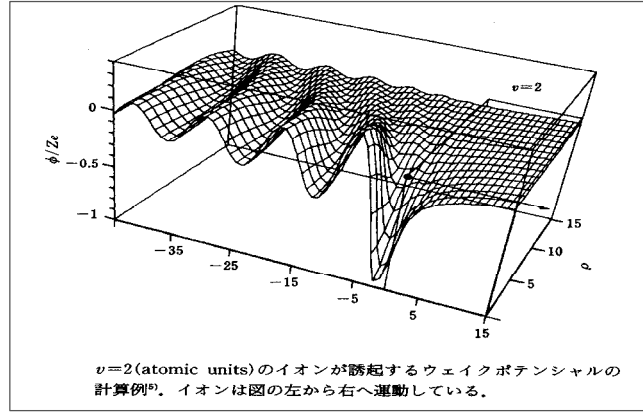
この低エネルギーでの測定ははじめて！



より精密なエネルギー損失の評価が必要

### 電子分極ポテンシャル(点電荷)

- ◆ Inclusion of polarization force



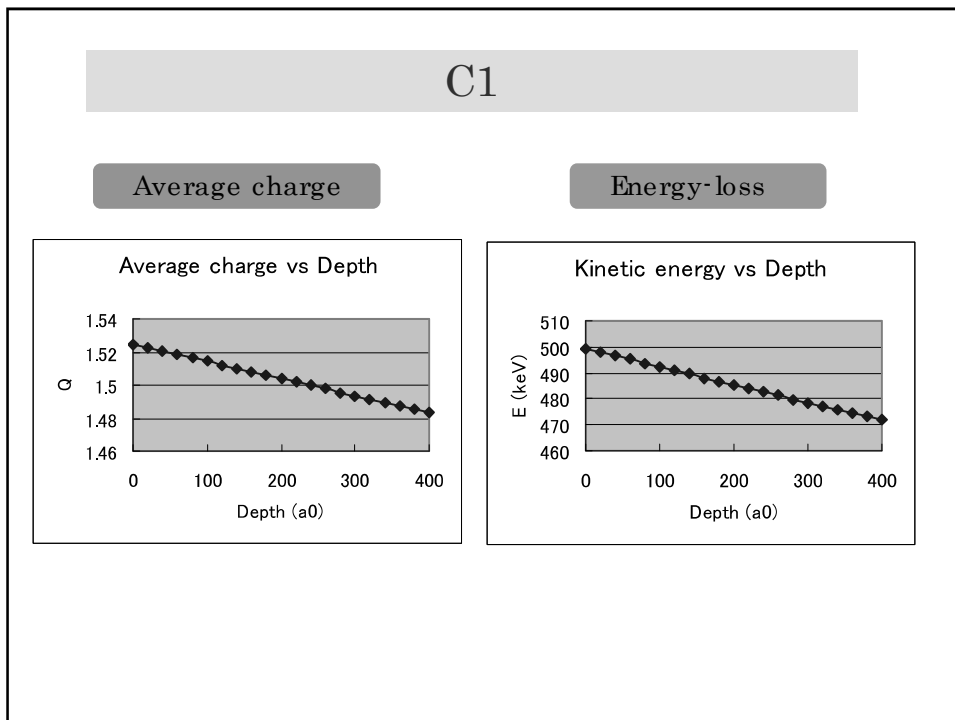
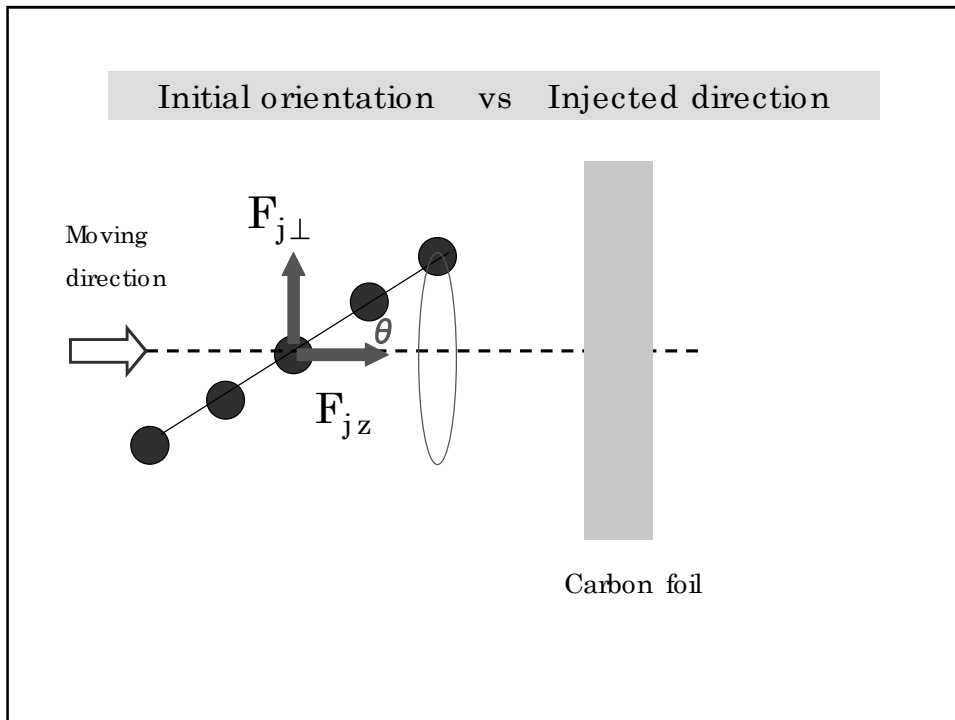
### Force acting on j - th ion (excluding coulomb force)

$$\vec{F}_{j\perp} = \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty dk_\perp k_\perp^2 \int_0^\infty d\omega \sum_i \rho_j(\vec{k}) \rho_i(-\vec{k}) \frac{J_1(k_\perp R_{ji\perp})}{k_\perp^2 + (\omega/v)^2} \left( \frac{X_{ji\perp}}{R_{ji\perp}} \vec{n}_x + \frac{Y_{ji\perp}}{R_{ji\perp}} \vec{n}_y \right) \times \left[ \cos\left(\frac{\omega}{v} R_{jiz}\right) \Re\left\{ \frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} - 1 \right\} - \sin\left(\frac{\omega}{v} R_{jiz}\right) \Im\left\{ \frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} - 1 \right\} \right]$$

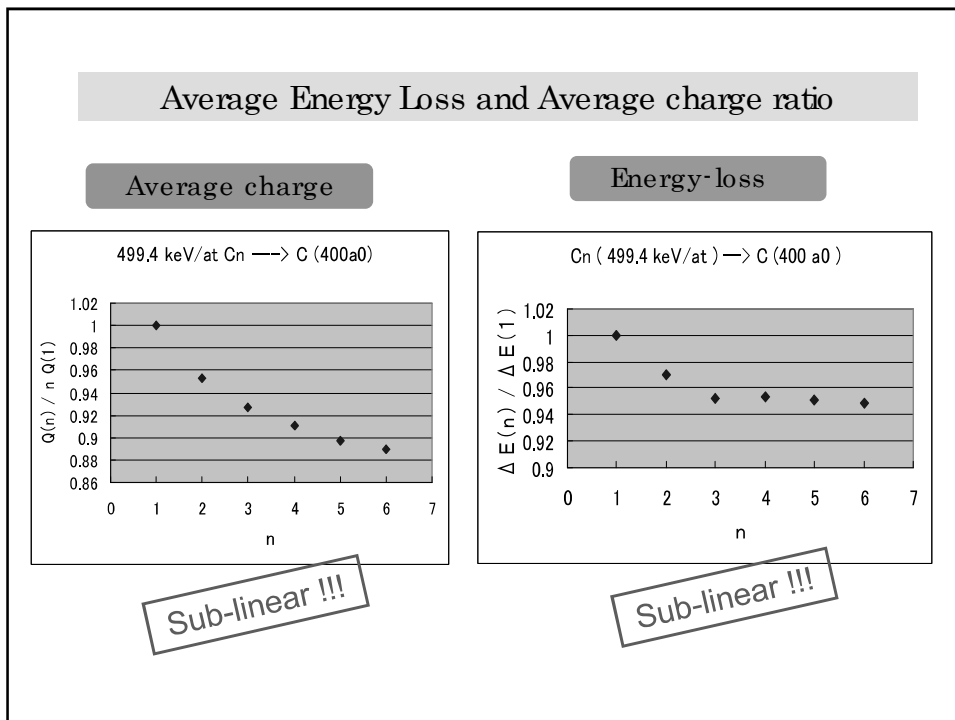
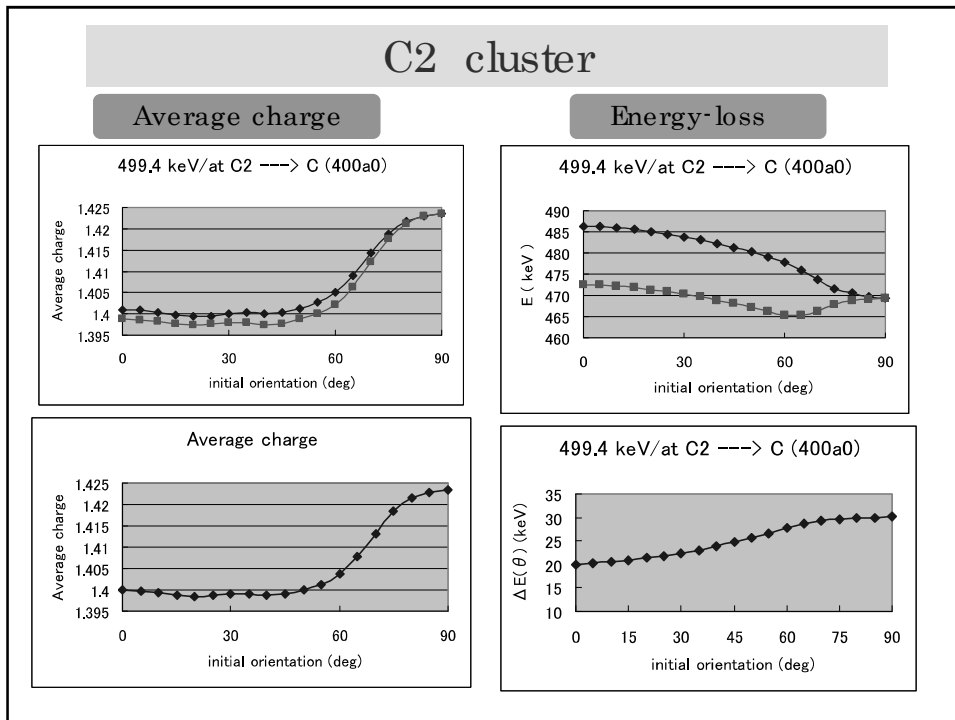
$$\vec{F}_{jz} = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty dk_\perp k_\perp \int_0^\infty d\omega \omega \sum_i \rho_j(\vec{k}) \rho_i(-\vec{k}) \frac{J_0(k_\perp R_{ji\perp})}{k_\perp^2 + (\omega/v)^2} \times \left[ \cos\left(\frac{\omega}{v} R_{jiz}\right) \Im\left\{ \frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} \right\} + \sin\left(\frac{\omega}{v} R_{jiz}\right) \Re\left\{ \frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} - 1 \right\} \right]$$

where

$$\begin{aligned} k^2 &= k_\perp^2 + (\omega/v)^2 & R_{ji\perp} &= [(X_{ji\perp})^2 + (Y_{ji\perp})^2]^{1/2} \\ R_{ji} &= [(R_{ji\perp})^2 + (R_{jiz})^2]^{1/2} \end{aligned}$$

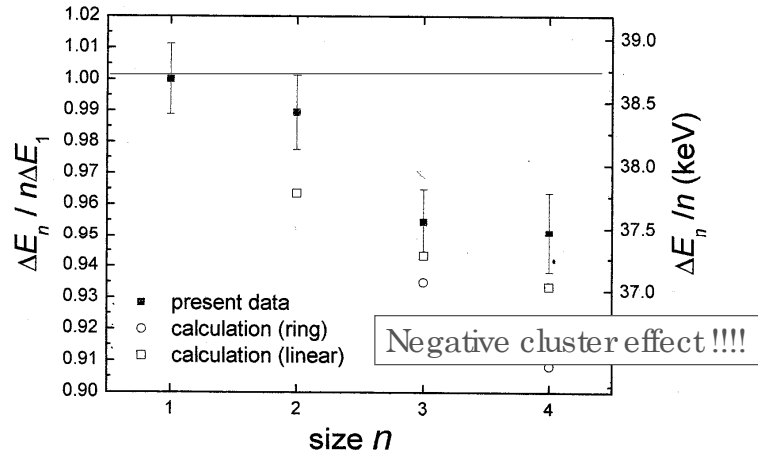






### Cluster energy loss experiment by Tsukuba group

0.50 MeV/atom Cn → C-foil



### Conclusion

Energy losses and Average charges are calculated for 0.5 MeV/atom cluster ion ( linear structure ) passing through carbon foil ( 400 a0 ).

- ◆ Initial orientation dependences are found in cluster energy-loss and cluster average charge.
- ◆ In cluster average charge, sub-linear cluster effect was found.
- ◆ In energy-loss, sub-linear cluster effect was found. agreement with Tsukuba data

付録 関係発表論文・特許(2006-2009)

本研究に関連する主要な発表論文、出願特許等		
発表者 又は 発明者	発表標題 又は 発明等の名称	掲載誌、巻号、頁、年 又は 出願（登録）番号、年
Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi	"Transmissions of cluster ions through a tandem accelerator on several stripper gases"	Rev. Sci. Instrum., 80, 106104 (2009)
Y. Takahashi, K. Narumi, A. Chiba, Y. Saitoh, K. Yamada, et. al.	"Vicinage effect on secondary-electron emission in the forward direction from amorphous carbon foils induced by swift C <sub>2+</sub> ions"	EPL, 88 63001 (2009)
N. Fujita, Y. Zushi, T. Matsui, A. Iwase, Y. Saitoh	"Effects of energetic heavy ion irradiation on the structure and magnetic properties of FeRh thin films"	Nucl. Instr. Meth. B 267, 921-924 (2009)
V. Lavrentiev, J. Vacik, H. Naramoto, K. Narumi	"Polymerization of solid C <sub>60</sub> under C <sub>60+</sub> cluster ion bombardment"	Appl. Phys. A 95, 867-873 (2009)
V. Lavrentiev, J. Vacik, H. Naramoto, K. Narumi	"Fullerene nanostructure design with cluster ion impacts"	Journal of Alloys and Compounds 483, 479-483 (2009)
平田 浩一、小林慶規、齋藤 勇一、鳴海 一雅、荒川 和夫	「荷電粒子照射時の絶縁破壊防止方法」	特許 4111270 (2008.4)
平田浩一、伊藤賢志、齋藤勇一、千葉敦也、鳴海一雅、山田圭介	「試料分析方法及び装置」	特願 2008-258802
K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, M. Adachi, K. Yamada, K. Narumi,	"Development of secondary ion mass spectroscopy using medium energy C <sub>60</sub> ion impact"	Nucl. Instrum. Methods B <b>266</b> 2450-2452 (2008).

K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi,	"Organic Contaminant Detection of Silicon Wafers Using Negative Secondary Ions Induced by Cluster Ion Impacts"	Appl. Phys. Express <b>1</b> 047002-1-047002-3 (2008)
M. Adachi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, K. Yamada, T. Kaneko,	"Monte Carlo Particle Trajectory Simulation for Classification of $C_3^+$ Cluster Ion Structure Utilizing Coulomb Explosion Imaging"	Radiat. Phys. Chem. <b>77</b> 1328-1332 (2008)
A. Chiba, Y. Saitoh, K. Narumi, M. Adachi, T. Kaneko,	"Average charge and its structure dependence of fragment ions under irradiation of a thin carbon foil with 1 MeV/atom $C_3^+$ cluster ion"	Phys. Rev. A <b>76</b> 063201-1-063201-6 (2007)
Y. Takahashi, T. Hattori, M. Hayashizaki,	"Energy loss measurement of slow $C_n^+$ ( $2 \leq n \leq 21$ ) cluster ions by cluster ion acceleration system"	Nucl. Instrum. Methods B <b>254</b> 49-54. (2007)
Y. Takahashi, T. Hattori, N. Hayashizaki,	"Energy loss of slow carbon cluster ions in thin carbon foils"	Phys. Rev. A <b>75</b> 013202-1-013202-6 (2007)
S. Seki, et.al.	Formation of Isolated Ultrafine Optical Nanofibers by Single Particle Nanofabrication Technique	J. Photopolym. Sci. Technol., 20 125-128. (2007)
S. Seki, et.al.	Cross-Linked Silicon Based Polymer Nanowire Formation by High Energy Charged Particles	Surf. Coat. Technol., 2018486-8489. (2007 )
S. Seki, et.al.	Optoelectronic Properties and Nanostructure Formation of s-Conjugated Polymers	Polymer J., 39 (2007) 277-293.
A. Sharma, M. Katiyar, Deepak, S. Seki, et al.	Room temperature ultraviolet emission at 357 nm from polysilane based organic light emitting diode	Appl. Phys. Lett., 88 (2006) 143511.

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質的量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速さ	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比体積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。  
 (b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup>	m/m
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup>	m <sup>2</sup> /m <sup>2</sup>
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m kg s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
電荷, 電力量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>-2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m <sup>-2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>3</sup> A <sup>2</sup>
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	°C		K
光照度	ルーメン	lm		cd sr <sup>(c)</sup>
放射線量	ルクス	lx		lm/m <sup>2</sup>
放射線種の放射能	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq		m <sup>2</sup> cd s <sup>-1</sup>
吸収線量, エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量, 周辺線量当量, 方向線量当量, 個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性	カタール	kat		s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。  
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号 rad 及び sr が用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。  
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号 sr を単位の表し方の中に、そのまま維持している。  
 (d) ヘルツは周期現象についての、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。  
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。  
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で "radioactivity" と記される。  
 (g) 単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> = s <sup>-1</sup>
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> = s <sup>-2</sup>
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> sA
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup>
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> sA
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> = m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> = kg s <sup>-3</sup>
	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼン	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値	
		名称	SI単位による値
分	min	1 min=60 s	
時	h	1 h=60 min=3600 s	
日	d	1 d=24 h=86 400 s	
度	°	1°=(π/180) rad	
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad	
秒	"	1"=(1/60)′=(π/648000) rad	
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>	
リットル	L, l	1 L=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>	
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> kg	

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベベル	B	
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> cd m <sup>-2</sup>
ファオトル	ph	1 ph=1 cd sr cm <sup>-2</sup> 10 <sup>4</sup> lx
ガラ	Gal	1 Gal=1 cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm <sup>2</sup> =10 <sup>-8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド <sup>(c)</sup>	Oe	1 Oe ≐ (10 <sup>3</sup> /4π) A m <sup>-1</sup>

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≐ 」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1 f=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 <sup>-6</sup> m

