

JAERI-M

8981

タンデム型静電加速器の負イオン源

1980年8月

峰 原 英 介

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

タンデム型静電加速器の負イオン源

日本原子力研究所東海研究所物理部

峰 原 英 介

(1980年7月8日受理)

原研タンデム型静電加速器には4種類の負イオン源(直接引き出しデュオプラズマトロン型イオン源, ハイニッキィ・ベニング・イオン・ゲージ型イオン源, リシウム荷電交換型イオン源, スパッタ型イオン源)が設置されています。

この報告ではこの4種類の物理的構造, 負イオン生成機構, 特性等について, 又, これらの負イオン源で使用される負イオン生成材料の種類, 性質, これらから作られる負イオンの電子親和力等について説明します。更に, これらの負イオン生成技術の現状と合せて, 負イオン生成技術の将来と残された問題についても議論します。

Negative Ion Sources for Tandem Accelerator

Eisuke MINEHARA

Division of Physics, Tokai Research Establishment,
JAERI

(Received July 8, 1980)

Four kinds of negative ion sources (direct extraction Duoplasmatron ion source, radial extraction Penning ion source, lithium charge exchange ion source and Middleton-type sputter ion source) have been installed in the JAERI tandem accelerator. The ion sources can generate many negative ions ranging from Hydrogen to Uranium with the exception of Ne, Ar, Kr, Xe and Rn. Discussions presented in this report include mechanisms of negative ion formation, electron affinity and stability of negative ions, performance of the ion sources and materials used for negative ion production. Finally, the author will discuss difficult problems to be overcome in order to get any negative ion sufficiently.

Keywords : Tandem Accelerator, Electron Affinity, Negative Ion Current, Emittance, Brightness, Life Time, Direct Extraction Duoplasmatron Ion Source, Penning Ion Source, Lithium Charge Exchange Ion Source, Sputter Ion Source.

目 次

1. はじめに	1
2. 負イオン生成が可能な元素の領域	1
2.1 電子親和力と負イオンの安定性	1
2.2 負イオン生成が可能な元素	2
2.2.1 単体の場合	2
2.2.2 化合物の場合	2
3. タンデム型静電加速器の負イオン源の動作原理	9
3.1 電子衝撃電離型イオン源	9
3.2 荷電交換型イオン源	10
3.3 スパッタ型イオン源	10
3.4 その他の負イオン源	11
4. 負イオン源の特性事項	17
4.1 元素の種類	17
4.2 負イオン電流強度	18
4.3 安定度	18
4.4 エミッタンスとブライトネス	18
4.5 イオンエネルギーの拡がり	19
4.6 イオン化効率	19
4.7 運転時間	19
4.8 保守の難易度	20
4.9 運転の難易度	21
4.10 価 格	21
5. 負イオン源の構成材料とイオン生成材料	29
5.1 蒸気圧	29
5.2 スパッタリング	29
5.3 腐 食	29
5.4 有害物質	30
5.5 アルカリ金属とアルカリ土金属	30
6. 残された問題点	37

Contents

1. Introduction	1
2. Elements from Which Negative Ion Species may be Generated	1
2.1 Electron Affinity and Stability of Negative Ions	1
2.2 Negative Ion Species	2
2.2.1 Atomic Negative Ions	2
2.2.2 Polyatomic Negative Ions	2
3. Operating Principles of Negative Ion Sources	9
3.1 Electron Impact Type Ion Source	9
3.2 Charge Exchange Ion Source	10
3.3 Sputter Ion Source	10
3.4 Other Ion Sources	11
4. Performance Parameters	17
4.1 Negative Ion Species	17
4.2 Intensity of Negative Ion Current	18
4.3 Stability	18
4.4 Emittance and Brightness	18
4.5 Spread of Ion Energy	19
4.6 Ionization Efficiency	19
4.7 Life Time	19
4.8 Maintenance	20
4.9 Operation	21
4.10 Financial Considerations	21
5. Materials used for Negative Ion Production and Ion Sources	29
5.1 Vapour Pressure of Materials	29
5.2 Sputtering	29
5.3 Corrosion	29
5.4 Harmful Materials	30
5.5 Alkali and Alkaline Earth Metals	30
6. Problems for Further Consideration	37

1. はじめに

タンデム型静電加速器は接地側から負イオンを入射し、正の高電圧端子へ向って初段加速を行うので、他の加速器とは異なって負イオン源が必要である。

原研タンデム型静電加速器には4種類の負イオン源（直接引き出しデュオプラズマトロン型イオン源、ハイニッキィ・ペニング・イオン・ゲージ型イオン源、リシウム荷電交換型イオン源、スパッタ型イオン源）が設置されている。現在まで実際に使用されて来た負イオン源は特殊な目的に用いられる偏極負イオン源等を除くとこの4種類に限定される。

この報告ではこの4種類の負イオン源の物理的構造、負イオン生成機構、特性事項等について、又使用される負イオン生成材料の種類、性質、これらから作られる負イオンの電子親和力等について説明する。これらの負イオン生成技術の現状と合せて、負イオン生成技術の将来、残された問題についても議論する。

この報告で議論している各元素の電流強度は最良の条件下でイオン源出口直後で測定された最大電流値である。したがって実際の場合にはこの値より相当に低い値しか得る事ができない。又、タンデム型静電加速器本体にも加速イオンの量と種類を制限する事項がいくつかある。したがって、これから議論する各元素のイオン源での負イオン生成はタンデム型静電加速器によるその元素の加速を100%保証しない。

2. 負イオン生成が可能な元素の領域

2.1 電子親和力と負イオンの安定性

良く知られている様に大部分の元素の中性原子+電子1個の系では、この2つが離れているよりは結合して負イオンとなる方が安定である。¹⁾又、電子2個が中性原子と結合して2価の負イオンとなる場合は、大部分の元素で不安定である事はほぼ確実である。¹⁾

一価の負イオンが安定である元素は中性原子と電子の結合エネルギーが正で、この電子は外界からエネルギーを受け取る事無しには解離しない。この電子の解離エネルギーは結合エネルギーと等しい値を持っている。この負イオンの安定性の目安となる結合エネルギーを電子親和力と呼び、次の式で定義される。¹⁾

$$\begin{aligned} & \text{電子親和力 (エレクトロン・アフィニティ)} \\ & = \text{中性原子のエネルギー} (E_0) - \text{負イオンのエネルギー} (E_-) \end{aligned}$$

負イオンが安定な元素の電子親和力は正の値を、不安定な元素の電子親和力は負の値を持っている。第1表は各元素の単体の電子親和力をeV単位で周期律表に併記した表²⁾である。この表から特長的な傾向として次の2点がすぐわかる。①第ⅥB, ⅦB族元素が非常に大きな

1. はじめに

タンデム型静電加速器は接地側から負イオンを入射し、正の高電圧端子へ向って初段加速を行うので、他の加速器とは異なって負イオン源が必要である。

原研タンデム型静電加速器には4種類の負イオン源（直接引き出しデュオプラズマトロン型イオン源、ハイニッキィ・ペニング・イオン・ゲージ型イオン源、リシウム荷電交換型イオン源、スパッタ型イオン源）が設置されている。現在まで実際に使用されて来た負イオン源は特殊な目的に用いられる偏極負イオン源等を除くとこの4種類に限定される。

この報告ではこの4種類の負イオン源の物理的構造、負イオン生成機構、特性事項等について、又使用される負イオン生成材料の種類、性質、これらから作られる負イオンの電子親和力等について説明する。これらの負イオン生成技術の現状と合せて、負イオン生成技術の将来、残された問題についても議論する。

この報告で議論している各元素の電流強度は最良の条件下でイオン源出口直後で測定された最大電流値である。したがって実際の場合にはこの値より相当に低い値しか得る事ができない。又、タンデム型静電加速器本体にも加速イオンの量と種類を制限する事項がいくつかある。したがって、これから議論する各元素のイオン源での負イオン生成はタンデム型静電加速器によるその元素の加速を100%保証しない。

2. 負イオン生成が可能な元素の領域

2.1 電子親和力と負イオンの安定性

良く知られている様に大部分の元素の中性原子+電子1個の系では、この2つが離れているよりは結合して負イオンとなる方が安定である。¹⁾又、電子2個が中性原子と結合して2価の負イオンとなる場合は、大部分の元素で不安定である事はほぼ確実である。¹⁾

一価の負イオンが安定である元素は中性原子と電子の結合エネルギーが正で、この電子は外界からエネルギーを受け取る事無しには解離しない。この電子の解離エネルギーは結合エネルギーと等しい値を持っている。この負イオンの安定性の目安となる結合エネルギーを電子親和力と呼び、次の式で定義される。¹⁾

$$\begin{aligned} & \text{電子親和力 (エレクトロン・アフィニティ)} \\ & = \text{中性原子のエネルギー} (E_0) - \text{負イオンのエネルギー} (E_-) \end{aligned}$$

負イオンが安定な元素の電子親和力は正の値を、不安定な元素の電子親和力は負の値を持っている。第1表は各元素の単体の電子親和力をeV単位で周期律表に併記した表²⁾である。この表から特長的な傾向として次の2点がすぐにわかる。①第ⅥB, ⅦB族元素が非常に大きな

正の電子親和力を持っている。したがって、これらの元素の負イオンは非常に安定である。②第0族元素はHeを除く全ての元素(Ne, Ar, Kr, Xe, Rn^{注1)})が負の電子親和力を持っている。したがって、これらの元素の負イオンは安定に存在できない。

2.2 負イオン生成が可能な元素

2.2.1 単体の場合

第2表は水素からウランまでの92種類の元素を電子親和力で分類した表である。ウランより重い超ウラン元素(Np-Lr)の電子親和力は現在まで知られていない。

正の電子親和力を持つ元素は71種類である。ランタン系元素は性質が似ているのでこの分類ではランタン系元素はLaと大体同じ電子親和力を持っていると考えている。

負の電子親和力を持つ元素は14種類である。Yの電子親和力の測定値は、 -0.76 、 -0.15 、 $+0.3\text{eV}$ の3つがあるが、この分類では負の値を持つ元素としてYを考えている。

非常に小さい電子親和力を持つ元素は実用的に負イオンを生成することは困難である。電子親和力が 0.3eV 以下 0eV 近傍以上の元素9種類(He, Be, B, Mg, Ti, Rb, Cs, Re)はこの生成困難な元素の群に入る。

2.2.2 化合物の場合

単体の電子親和力が負である元素は単体の形のままでは原理上負イオン生成は不可能である。しかしながら、正の電子親和力を持つ化合物を使用すれば、化合物の形で負イオンを生成することが可能である。

たとえば、Nはサイクロトロン、リニアック等で正イオンとしてよく加速されている元素であるが、単体の電子親和力は -0.12eV で負イオンは不安定であるからタンデム型静電加速器でこれを加速することは不可能である。しかしながら、 NH_2^- 、 CN^- 、 NO^- 、 $\text{C}_2\text{H}_6\text{N}^-$ 、等の窒素化合物負イオンは正の大きな電子親和力を持ち、²⁾安定であるのでタンデム型静電加速器で加速可能である。これらの窒素化合物の電子親和力の値は第3表を参照して下さい。

この様に単体の電子親和力が負の値を持つ元素でもN, Ca, Sc, Mn, Sr, Y, Cd, Ba, Hf, Hgの場合には、電子親和力が正の値を持つ酸化物やフッ化物等が存在するので化合物の形で負イオンを生成することが可能である。しかしながら、 $5 \pm 2 \times 10^{-4}$ 秒程度の寿命を持つ4P状態負イオンを利用できるHe以外の希ガス元素Ne, Ar, Kr, Xe, Rnは安定な化合物を通常作らないので化合物の形でも負イオンを生成することは不可能である。したがって現在のところ、原理上87種類の元素の負イオンを生成することが可能である。第6章で希ガス元素の負イオン生成可能性について再度議論する。化合物負イオンを生成する場合に使用できる単体と化合物の例を各元素について第4表にまとめている。

注1) Rnの電子親和力は知られていない。計算推定により負の電子親和力を持つと考えられている。

第1表 ELECTRON AFFINITY (eV) TABLE

	IA	IIA	IIIA	IVA	VA	VA	VA	VIA	VIA	VII	IB	IIIB	IIIB	IVB	V	VB	VB	VB	VB	O												
1	1 H 0.75																			2 He 0.03												
2	3 Li 0.62	4 Be 0.24														5 B 0.30	6 C 1.20	7 N 0.12	8 O 1.47	9 F 3.44	10 Ne <0											
3	11 Na 0.7	12 Mg 0.32														13 Al 0.52	14 Si 1.39	15 P 0.78	16 S 2.08	17 Cl 3.62	18 Ar <0											
4	19 K 0.6	20 Ca -1.88	21 Sc -0.14	22 Ti 0.3	23 V 0.7	24 Cr 0.85	25 Mn -1.07	26 Fe 0.5	27 Co 1.0	28 Ni 1.4	29 Cu 1.8	30 Zn 0.09	31 Ga 0.4	32 Ge 1.44	33 As 1.07	34 Se 2.12	35 Br 3.55	36 Kr <0														
5	37 Rb 0.2	38 Sr -1.35	39 Y <0	40 Zr 0.7	41 Nb 1.23	42 Mo 1.15	43 Tc 1.0	44 Ru 1.45	45 Rh 1.6	46 Pd 1.1	47 Ag 2.0	48 Cd -0.7	49 In 0.4	50 Sn 1.03	51 Sb 0.9	52 Te 2.1	53 I 3.33	54 Xe <0														
6	55 Cs 0.25	56 Ba -0.49	57 La 0.71	58 Ce -0.63	59 Pr 0.5	60 Nd 0.5	61 Pm 0.5	62 Sm 1.4	63 Eu 1.97	64 Gd 2.56	65 Tb 2.0	66 Dy -0.45	67 Ho 0.5	68 Er 1.2	69 Tm 0.68	70 Yb 1.5	71 Lu 1.5	72 Hf 0.63	73 Ta 0.5	74 W 0.5	75 Re 0.2	76 Os 1.4	77 Ir 1.97	78 Pt 2.56	79 Au 2.0	80 Hg -0.45	81 Tl 0.5	82 Pb 1.2	83 Bi 0.68	84 Po 1.5	85 At 1.5	86 Rn <0
7	87 Fr	88 Ra	89 Ac	90 Th	91 Pa	92 U >0	93 Np	94 Pu	95 Am	96 Cm	97 Bk	98 Cf	99 Es	100 Fm	101 Md	102 No	103 Lr															
57-71 Lanthanide	57 La 0.55	58 Ce	59 Pr	60 Nd	61 Pm	62 Sm	63 Eu	64 Gd	65 Tb	66 Dy	67 Ho	68 Er	69 Tm	70 Yb	71 Lu						57-71 Lanthanide											
	IA	IIA	IIIA	IVA	VA	VA	VIA	VIA	VII	IB	IIIB	IIIB	IVB	V	VB	VB	VB	VB	VB	O												

第2表 電子親和力による元素の分類

正の電子親和力を持つ元素 71種類
H He Li Be B C O F Na Mg Al Si P S Cl K Ti V Cr Fe Co Ni Cu Zn Ga Ge As Se Br Rb Zr Nb Mo Tc Ru Rh Pd Ag In Sn Sb Te I Cs La Ce Pr Nd Pm Sm Eu Gd Tb Dy Ho Er Tm Yb Lu Ta W Re Os Ir Pt Au Tl Pb Bi Po U
負の電子親和力を持つ元素 14種類
N Ne Ar Ca Sc Mn Kr Sr Y Cd Xe Ba Hf Hg
電子親和力が知られていない元素 7種類
At Rn Fr Ra Ac Th Pa

第3表 窒素化合物の電子親和力

化 学 形	電 子 親 和 力 (eV)
NO^-	0.85
N_2O^-	0.27
NO_2^-	3.99
NO_3^-	4.22
CN^-	3.17
CNS^-	2.16
$\text{C}_6\text{H}_5\text{NO}_2^-$	0.4
$\text{C}_2\text{H}_6\text{N}^-$	1.04
NH_2^-	1.21
NF_2^-	3.00

第4表 化合物負イオンの生成材料

原子番号	元素記号	常温での状態	負イオン生成材料の化学形
1	H	(気体)	H ₂ , HF, HCl, HBr, HI, H ₂ S, NH ₃
2	He	(")	He
3	Li	(固体)	Li, Li ₂ O
4	Be	(")	Be
5	B	(気体)	BF ₃ , B ₂ H ₆
		(固体)	B, BO, BN
6	C	(気体)	CO, CO ₂ , CN
		(固体)	C, SiC
7	N	(気体)	N ₂ , CN, NO, N ₂ O, NO ₂ , NH ₃
		(固体)	BN
8	O	(気体)	O ₂ , NO ₂ , CO ₂
9	F	(")	F ₂ , HF, BF ₃ , CClF ₃
		(固体)	CaF
10	Ne	(気体)	
11	Na	(固体)	Na, Na ₂ O
12	Mg	(")	Mg, MgO
13	Al	(気体)	(CH ₃) ₃ Al
		(固体)	Al, Al ₂ O ₃
14	Si	(気体)	SiF ₄ , SiH ₄
		(固体)	Si, SiO ₂ , SiO
15	P	(気体)	PH ₃ , PF ₅ , PCl ₃
		(固体)	P ₂ O ₃ , P, P ₂ O ₅
16	S	(気体)	SO ₂ , SO ₃ , SF ₆ , SF ₄ , H ₂ S
		(固体)	S, Ag ₂ S
17	Cl	(気体)	Cl ₂ , HCl, BCl ₃ , PCl ₃ , CCl ₃ F
18	Ar	(")	
19	K	(固体)	K, K ₂ O
20	Ca	(")	CaF, Ca, CaO
21	Sc	(")	Sc, Sc ₂ O ₃
22	Ti	(")	Ti, TiO, Ti ₂ O ₃ , TiO ₂
23	V	(")	V ₂ O ₅ , V, VO, V ₂ O ₃ , VO ₂
24	Cr	(")	Cr, CrO, Cr ₂ O ₃ , CrCl ₂
25	Mn	(")	Mn, MnO, Mn ₂ O ₃ , MnO ₂ , Mn ₂ O ₅ , MnO ₃
26	Fe	(")	Fe, FeO, Fe ₂ O ₃

原子番号	元素記号	常温での状態	負イオン生成材料の化学形
27	Co	(固体)	Co, CoO, Co ₂ O ₃
28	Ni	(")	Ni, NiO, Ni ₂ O ₃
29	Cu	(")	Cu, Cu ₂ O, CuO
30	Zn	(")	Zn, ZnO
31	Ga	(気体)	(CH ₃) ₃ Ga
		(固体)	Ga, GaO, Ga ₂ O ₃
32	Ge	(気体)	GeH ₄ , GeCl ₄ , GeBr ₄
		(固体)	Ge, GeO ₂ , GeO
33	As	(気体)	AsH ₃
		(固体)	As, As ₂ O ₃ , As ₂ O ₅
34	Se	(気体)	H ₂ Se, COSe
		(固体)	Se, SeO, SeO ₂ , Se ₂ O ₅
35	Br	(気体)	HBr, CBrF ₃
36	Kr	(")	
37	Rb	(固体)	Rb, Rb ₂ O
38	Sr	(")	Sr, SrO
39	Y	(")	Y, Y ₂ O ₃
40	Zr	(")	Zr, ZrO ₂
41	Nb	(")	Nb, NbO, Nb ₂ O ₃ , NbO ₂ , Nb ₂ O ₅
42	Mo	(")	Mo, MoO, Mo ₂ O ₃ , MoO ₂ , Mo ₂ O ₅ , MoO ₃
43	Tc	(")	Tc, TcO ₂ , TcO ₃ , Tc ₂ O ₇
44	Ru	(")	Ru, RuO, Ru ₂ O ₃ , RuO ₂ , Ru ₂ O ₅
45	Rh	(")	Rh, Rh ₂ O, RhO, Rh ₂ O ₃ , RhO ₂
46	Pd	(")	Pd, PdO, PdCl ₂
47	Ag	(")	Ag, Ag ₂ S, Ag ₂ O, AgO
48	Cd	(")	Cd, CdO
49	In	(")	In, In ₂ O ₃ , In ₂ O
50	Sn	(気体)	SnH ₄
		(固体)	Sn, SnO, SnO ₂
51	Sb	(気体)	SbH ₃
		(固体)	Sb, Sb ₂ O ₃ , Sb ₂ O ₅
52	Te	(気体)	H ₂ Te
		(固体)	Te, TeO, TeO ₂ , TeO ₃
53	I	(気体)	HI
		(固体)	I, I ₂ O, I ₂ O ₅ , I ₂ O ₇
54	Xe	(気体)	

原子番号	元素記号	常温での状態	負イオン生成材料の化学形
54	Xe	(固体)	
55	Cs	(")	Cs, Cs ₂ O
56	Ba	(")	Ba, BaO, BaCl ₂
57	La	(")	La, La ₂ O ₃
58	Ce	(")	Ce, Ce ₂ O ₃ , CeO ₂
59	Pr	(")	Pr, Pr ₂ O ₃ , PrO ₂
60	Nd	(")	Nd, Nd ₂ O ₃
61	Pm	(")	Pm, Pm ₂ O ₃ , PmO ₂
62	Sm	(")	Sm, Sm ₂ O ₃
63	Eu	(")	Eu, EuO, Eu ₂ O ₃
64	Gd	(")	Gd, Gd ₂ O ₃
65	Tb	(")	Tb, Tb ₂ O ₃ , TbO ₂
66	Dy	(")	Dy, Dy ₂ O ₃
67	Ho	(")	Ho, Ho ₂ O ₃
68	Er	(")	Er, Er ₂ O ₃
69	Tm	(")	Tm, Tm ₂ O ₃
70	Yb	(")	Yb, YbO, Yb ₂ O ₃
71	Lu	(")	Lu, Lu ₂ O ₃
72	Hf	(")	Hf, HfO ₂ , HfCl ₄
73	Ta	(")	Ta, TaO, Ta ₂ O ₃ , TaO ₂ , Ta ₂ O ₅
74	W	(")	W, WO, WO ₂ , W ₂ O ₅ , WO ₃
75	Re	(")	Re, Re ₂ O ₃ , ReO ₂ , Re ₂ O ₅ , ReO ₃ , Re ₂ O ₇
76	Os	(")	Os, OsO ₄
77	Ir	(")	Ir, Ir ₂ O, IrO, Ir ₂ O ₃ , IrO ₂
78	Pt	(")	Pt, PtCl ₂
79	Au	(")	Au
80	Hg	(")	Hg ₂ O, HgO
81	Tl	(")	Tl, Tl ₂ O, Tl ₂ O ₃
82	Pb	(")	Pb, PbO, PbO ₂
83	Bi	(")	Bi, Bi ₂ O ₃
84	Po	(")	Po, PoO, PoO ₂ , Po ₂ O ₅
85	At		
86	Rn	(気体)	
87	Fr		
88	Ra	(固体)	Ra, RaO
89	Ac	(")	Ac

原子番号	元素記号	常温での状態	負イオン生成材料の化学形
90	Th	(固体)	Th, ThO ₂
91	Pa	(")	Pa, PaO
92	U	(気体)	UF ₆
		(固体)	U, UO ₂ , UO, U ₂ O ₃ , U ₂ O ₅ , UO ₃ , UN

3. タンデム型静電加速器の負イオン源の動作原理

3.1 電子衝撃電離型イオン源

古くからこの型に属する多くのイオン源が開発されて来た。タンデム型静電加速器ではこの型のイオン源として熱陰極型イオン源と冷陰極型イオン源がよく使用されている。この2種類のイオン源は電子の発生方法が異なるが、基本的動作原理は同じである。すなわち、カソード（陰極）から供給される電離を起すに十分な高いエネルギーを持った電子は磁場中を運動しながら気体分子と衝突し気体分子を電離しプラズマを生成する。負イオンは正イオンや電子とともにプラズマ中に存在するので、適当な電極を用いて印加された電場によりプラズマ中から直接引き出される。

タンデム型静電加速器で使用されている熱陰極型イオン源は直接引き出しデュオプラズマトロン型（DEDP型）イオン源³⁾と呼ばれ、冷陰極型イオン源は設計者の名前を冠してハイニッキ・ペニング・イオン・ゲージ型（HPIG型）イオン源⁴⁾と呼ばれている。

第1図はDEDP型イオン源の説明図である。このイオン源はジュール加熱したフィラメントを電子供給源であるカソードとしている。フィラメントは種々の形のもものが工夫されているが、高融点高仕事関数の金属、合金、ポーラス金属、酸化物が通常使用されている。フィラメントを囲む様に設置されている円筒状電磁石により中間電極（ツビッシュン・エレクトロード）と陽極（アノード）との間に強くしぼり込められた磁場を作り、中間電極からアノード近傍まで高密度のプラズマを引き出している。中間電極から出て来たプラズマの中心軸と引き出しを行う光学系（アノードの小孔より右側）の軸を少し変位すると負イオンの引き出し電流量が増加する。この為DEDP型イオン源はこの2つの軸の間の角度を最適な値に調節する駆動機構と中間電極を自由に動かす為のペローズを持っている。DEDP型イオン源は固体蒸発炉を持っていないのでイオン生成材料は気体に限られる。図の右半分は負イオンの引き出し、集束、加速を行う光学系である。DEDP型イオン源は負イオンとともに引き出される不用の電子を取り除く非軸対称磁場が存在しないので、光学系の最初のレンズの部分に電子を取り除く為の小さな永久磁石が取り付けられている。

第2図はHPIG型イオン源の説明図である。このイオン源は紙面の上下方向に軸を持つ円筒状のアノード1個とこのアノードの両端に円板状のカソード2枚を持っている。磁場は円筒軸方向に印加される様に図の背面にある電磁石からカソードの部分まで磁路が配置されている。プラズマはこのアノードとカソードで囲まれる部分で作られ、負イオンはアノードの表面にある小孔から引き出される。中央部から左に筒状に伸びた部分は固体用蒸発炉である。この蒸発炉を使用して1000°C程度以下で 10^{-2} トールの蒸気圧を持つ固体を蒸発させることができる。従って、このHPIG型イオン源は気体のみでなく、低融点の固体もイオン生成材料として使用できる。ジョウゴ状の隔膜より右側はDEDP型イオン源とほぼ同様の光学系である。

3.2 荷電交換型イオン源

何らかの方法で正イオンビームを作り、アルカリ金属蒸気等の電子を他に与えやすい気体中を通過させる。通過中に正イオンは2回の荷電交換を行って負イオンに変換される。これが荷電交換型イオン源の動作原理である。¹⁾⁴⁾

第3図はリシウム荷電交換型(LCE型)イオン源の説明図である。このイオン源の左端はデュオプラズマトロン型正イオン源、続いて中央左は正イオンビームの為にレンズと電子トラップ、中央部には電子を与える為のリシウム蒸気を作る蒸発炉、蒸発炉ヒーター、リシウム蒸気の流出を弱めるバッフル、荷電交換を行うチャンネル等がある。右端のギャップレンズは負イオンの集束、加速を行う。

LCE型イオン源は荷電交換を行う部分が負の高電位になっていてこの両端にある光学系で加速されるので負イオンは印加された電位の2倍に相当するエネルギーを得る。荷電交換を行うチャンネルの表面はビームによってたたかれるが、この時発生するチャンネル表面元素の負イオンも引き出すことができる。この負イオンは印加されている電位に相当するエネルギーを得るのみである。このチャンネル表面元素の負イオンの発生機構は基本的に次に述べるスパッタ型イオン源と同一と考えられる。

3.3 スパッタ型イオン源

HPIG型イオン源、DEDP型イオン源、LCE型イオン源は割合古くから知られていたイオン源であるが、スパッタ型イオン源は最近開発が始められた新しい型のイオン源である。このイオン源の動作原理はまだよく理解されておらず不明な点が多い様である。この報告では普通よく説明に用いられている1つの仮説を紹介する。現在、数種類のスパッタ型イオン源が報告されているが、その中で最もよく使用されているリフォーカス・UNIS型イオン源⁵⁾に話しを限定する。

第4図はジェネラル・アイオニクス社(米国)のIONEX 834型と呼ばれるリフォーカス・UNIS型イオン源の説明図である。右端はセシウムの正イオンビームを生成する為の表面電離ガンである。表面電離ガンは表面電離を行うポースタングステン・アイオナイザー、オープン、アイオナイザー・ヒーター、オープン・ヒーター等から構成されている。アイオナイザー表面で生成したセシウム正イオンは20-30KVで引き出され、加速される、続いて四分割アインツェル・レンズで集束、偏向された後、スパッタ・コーンの表面を衝撃する。12個のスパッタ・コーンが回転円板上に装着され、遠隔操作により仕意のコーンを選択することができる。スパッタ・コーン表面で生成した負イオンは左端の光学系で引き出し、集束、加速が行われる。

電離エネルギーが小さいセシウム等のアルカリ金属原子は高い仕事関数を持つタングステンの金属表面に付着した場合、最も弱く結合した電子がこの金属表面に移動しやすくなる。金属が十分に高温で付着していたアルカリ金属原子が再蒸発する時、ある割合で正イオンが生成する。この現象を表面電離現象と呼ぶ。⁶⁾

表面電離現象と非常に似た説明がスパッタ・コーン表面での負イオン生成現象について行わ

れている。⁷⁾第5図はその説明図である。原子 "C" から成るスパッタ・コーン表面に付着したアルカリ金属原子 "K" は低い電離エネルギーを持っているので、高い仕事関数を持っている原子 "C" に最も弱く結合した電子をある確率で与える。この時、別の高いエネルギーを持ったイオン "K⁺" がスパッタ・コーン表面を衝撃し、表面の原子をスパッタする時にある割合で負に帯電した表面の原子 "C⁻" を生成する。

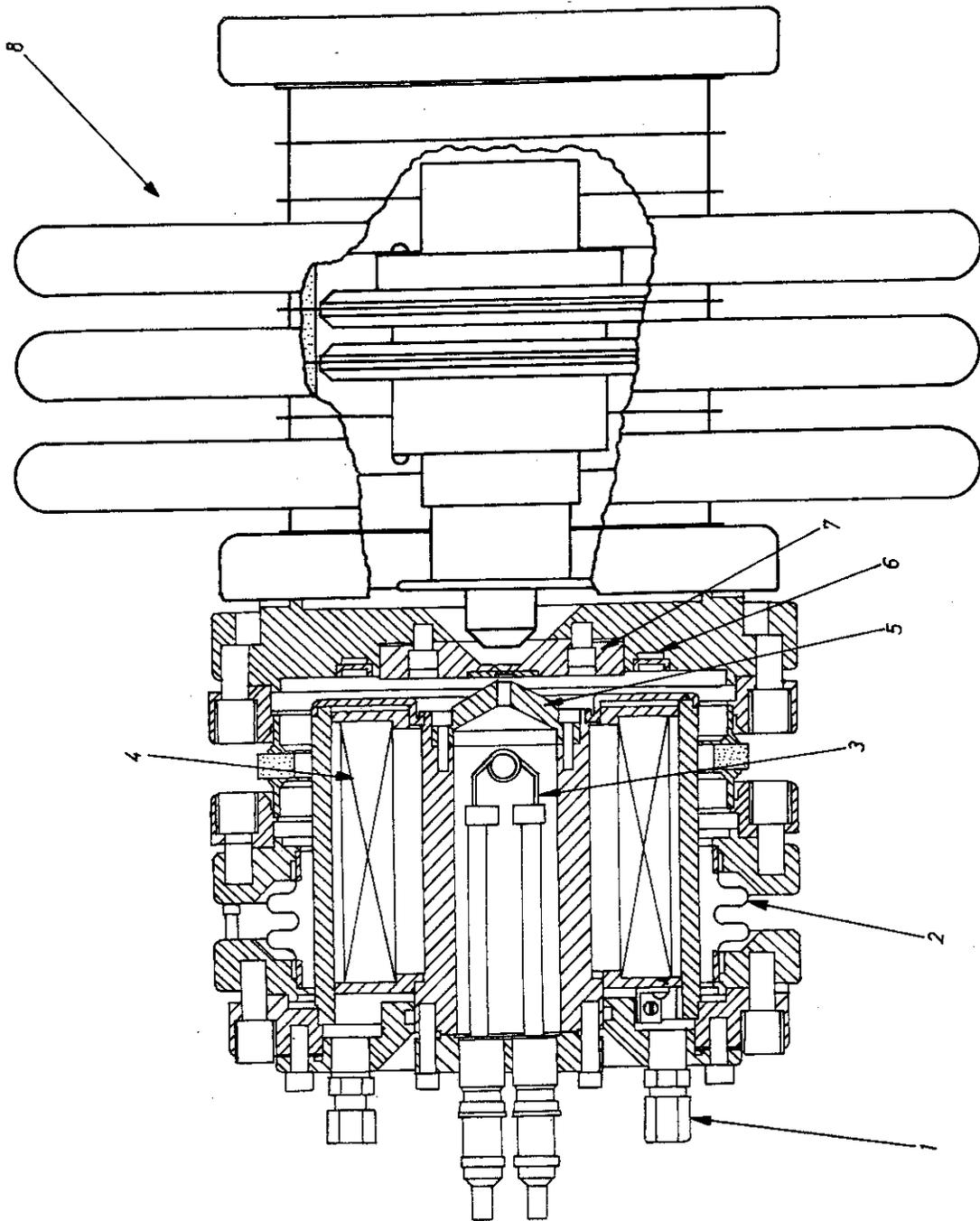
スパッタ型イオン源は固体の物質を直接にスパッタすることによってイオン化できる。又、気体状物質をスパッタ・コーン表面に吸着させ、この吸着分子をスパッタすることによって気体状物質をもイオン化できる。

3.4 その他の負イオン源

タンデム型静電加速器で通常使用される負イオン源は以上の4種であるが、特殊な目的の為にこの他にいくつかの負イオン源が開発されている。たとえば、偏極イオン源、⁸⁾ マグネトロン型イオン源、⁹⁾ 表面電離型イオン源、⁶⁾ 放電型イオン源⁶⁾等が種々の分野で使われている。偏極イオン源は負イオンのスピンの向きをそろえることができる。この為他の方法では困難な核力のスピン依存性を調べることができる。多くの偏極負イオン源が世界各地で建設されて、原子核の研究に使用されている。マグネトロン型イオン源、表面電離型イオン源、放電型イオン源等はタンデム型静電加速器では現在のところ使用されていない。

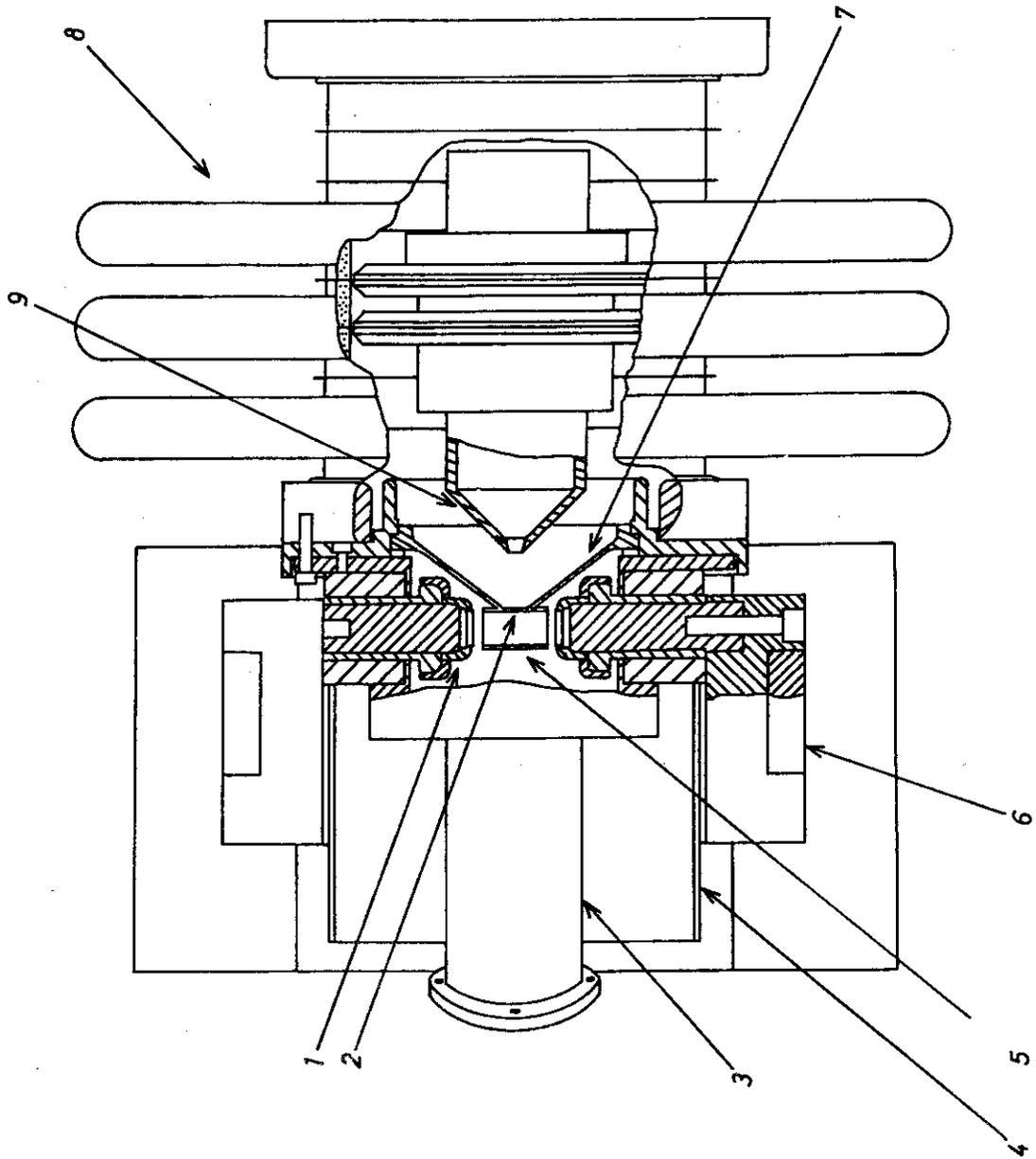
第1図 DEDP型イオン源

- (1) magnet cooling connector,
- (2) zwischen electrode bellows,
- (3) filament,
- (4) magnet coil,
- (5) zwischen electrode,
- (6) cooling channel,
- (7) anode and orifice,
- (8) einzel lens and sweeping magnets.



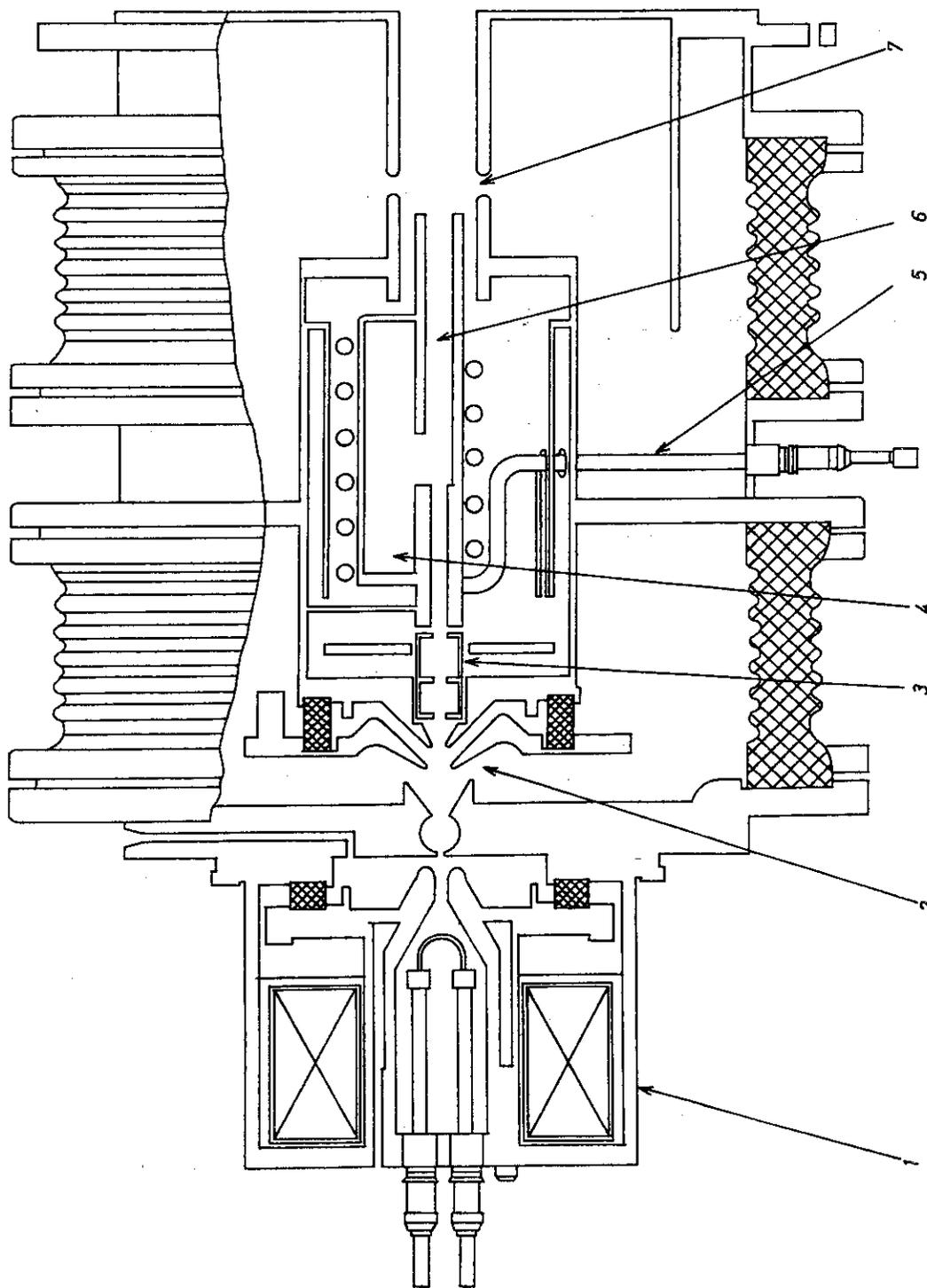
第2図 HPIG型イオン源

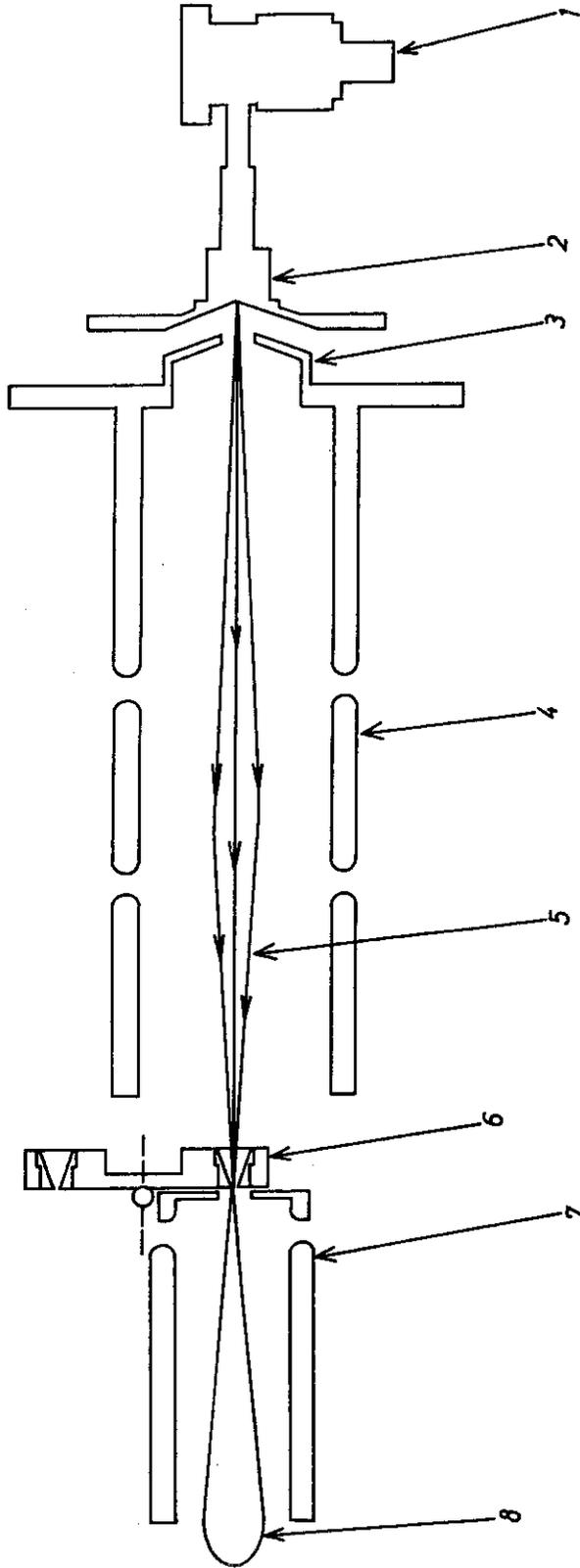
- (1) cathode,
- (2) extraction hole,
- (3) oven cylinder,
- (4) magnet coil,
- (5) anode cylinder,
- (6) magnet yoke,
- (7) funnel-shaped insertion between source and high vacuum system,
- (8) einzel lens,
- (9) extraction electrode.



第3図 LCE型イオン源

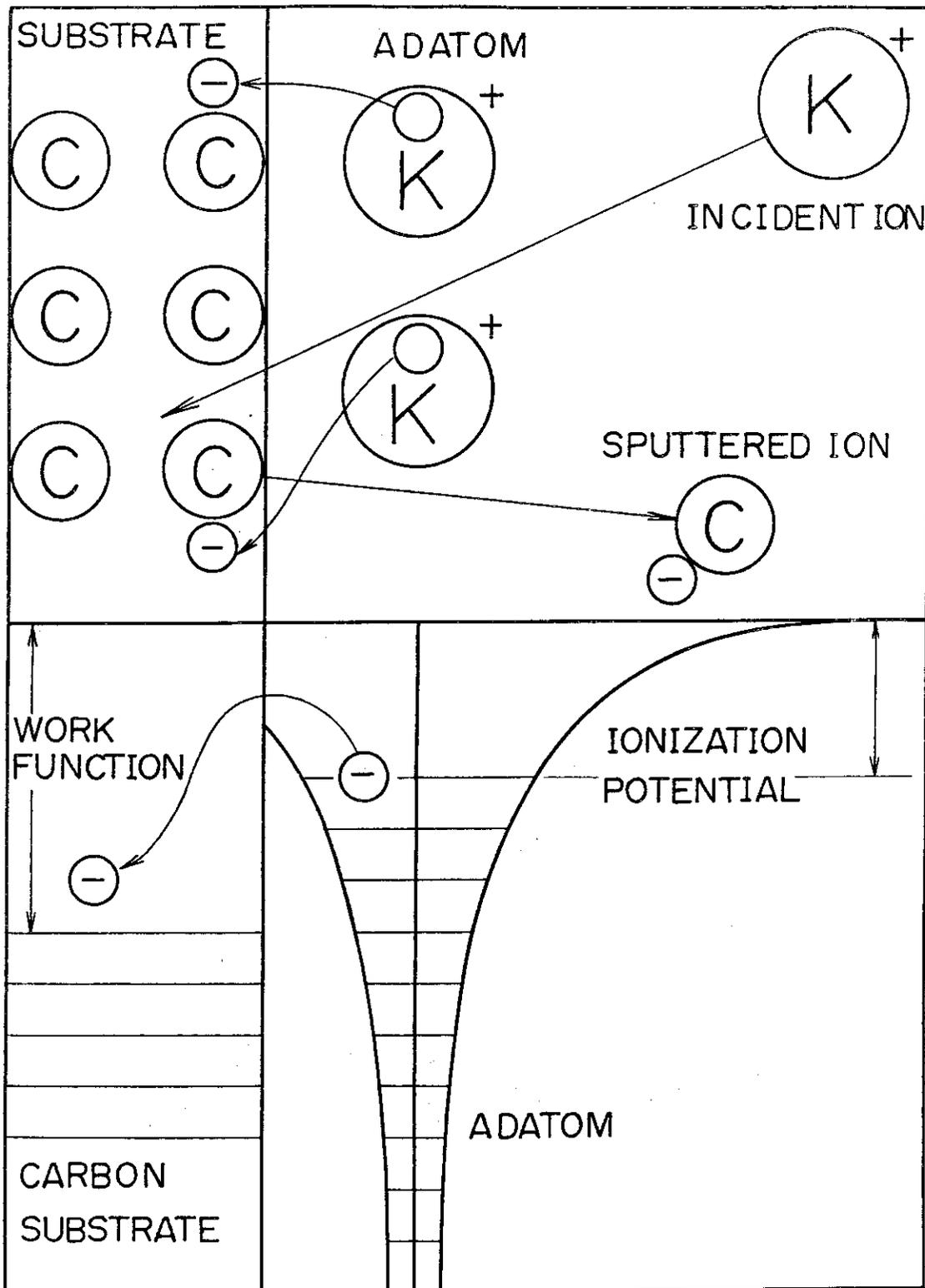
- (1) duoplasmatron positive ion source,
- (2) positive ion extraction lens and electron trap,
- (3) condenser baffle,
- (4) oven,
- (5) heater,
- (6) charge exchange canal,
- (7) negative ion extraction lens.





第4図 スパッタ型イオン源

- (1) cesium oven and heater,
- (2) porous tungsten ionizer and ionizer heater,
- (3) cesium beam extractor,
- (4) quadrupole einzel lens,
- (5) focused positive cesium beam,
- (6) beam selection mechanism,
- (7) negative ion extractor,
- (8) negative ion beam.



第5図 スパッタコーン表面での負イオン生成

4. 負イオン源の特性事項

ある目的に使用する負イオン源を選択する場合、次の特性事項を検討する必要がある。

- ① 元素の種類
- ② 負イオン電流強度
- ③ 安定度
- ④ エミッタンス（ビームが占める位相空間面積）
- ⑤ ブライトネス（単位位相空間面積当りの負イオン電流強度）
- ⑥ イオンエネルギーの拡がり
- ⑦ イオン化効率
- ⑧ 連続運転時間
- ⑨ 保守の難易度
- ⑩ 運転の難易度
- ⑪ 価格

この章では第3章で説明した4種類の負イオン源の特性事項とそれらがタンデム型静電加速器とどのように関係するかを議論する。

4.1 元素の種類

第5表に各イオン源別に現在まで負イオンが生成された元素と生成可能と考えられる元素を分類している。DEDP型イオン源はイオン生成材料として気体を使用し、気体である単体元素又は化合物の負イオンを作る。第5表に示す様に10種類の元素の負イオンが生成され、その他に12種類の元素の負イオンが生成可能と考えられる。

HPIG型イオン源を使用して現在まで19種類の元素の負イオンが生成され、その他に14種類の元素の負イオンが生成可能と考えられる。DEDP型イオン源よりも多くの種類の元素の負イオンを生成できる理由はHPIG型イオン源が固体用蒸発炉を持っているので1000°C程度以下で 10^{-2} torr程度以上の蒸気圧を持つ物質ならば十分にイオン生成材料として使用できる為である。

LCE型イオン源の場合には使用する正イオン源により負イオンの種類は大きく変化する。ここではデュオプラズマトロン型正イオン源を使用した場合を考える。現在までLCE型イオン源を使用して7種類の元素の負イオンが生成され、その他に19種類の元素の負イオンが生成可能と考えられる。他のイオン源にない、LCE型イオン源の特長は He^- の生成が可能であることである。希ガス元素6種類のうちで現在までにタンデム型静電加速器で加速可能なのはこの He^- のみである。これは第3章ですでに述べた様に He^- の寿命が負イオンの加速所要時間に比較して長い為である。他の希ガス元素にはこの様に十分に長寿命の状態は存在しないらしく、現在まで加速に成功していない。

スパッタ型イオン源は最も多くの元素の負イオンを生成できる。現在まで53種類の元素の負イオンが生成され、その他に33種類の元素の負イオンが生成可能と考えられている。又、非常に微弱で実用にはならないが、 He^- が検出された例がある。したがってスパッタ型イオン源は希ガス元素6種類を除いた全元素の負イオンが生成可能と考えられる。

4.2 負イオン電流強度

各元素の具体的な負イオン電流強度は第6表^{3, 10, 11)}に記載されている。この表中で使用されている「ガス放電プラズマを利用したイオン源」という名称はDED P型イオン源、HPI G型イオン源、LCE型イオン源の総称である。ガス放電プラズマを利用したイオン源の欄では負イオンの化学形と負イオン電流強度(μA 単位)が、使用されたイオン源の種類を表す略記号(DED P型イオン源はD, HPI G型イオン源はH, LCE型イオン源はC)と共に示されている。スパッタ型イオン源の欄では負イオンの化学形と負イオン電流強度が示されている。

この表からイオン源の種類にかかわらず、負イオン電流強度で元素を分類すると第7表のようになる。

4.3 安定度

ガス放電プラズマの状態は分圧、放電電圧と電流、負イオン電流強度等に敏感に依存して変化するので、ガス放電プラズマを利用したイオン源から引き出される負イオン電流は割合不安定である。この変化を少なくする為にガス容器の使用圧力を高くしてガス流量の変化を小さくする事や安定化電源を用いる事等の対策が行われている。

純粹に熱現象のみでセシウム³⁾の供給と電離を行う表面電離ガンは熱的定常状態において極めて安定に動作する。従って、スパッタ型イオン源から得られる負イオン電流は定常状態において安定である。

4.4 エミッタンスとブライトネス

負イオンはイオン源から引き出される時に進行方向と垂直な平面上にも運動量と位置の拡がりを持っているので、進行するにしたがって発散する。又、進行方向に垂直な軸に沿う運動量と位置の位相空間の中でビームが占有する面積をエミッタンスと呼び、ビームの方向と位置の拡がりを表わす。

実用上エミッタンスは第6図の様にある割合の部分イオンビームを含む電流等高線内の面積で表わされる。第7図は4種類のイオン源が代表的な動作条件下で働いている場合の部分イオン電流(全負イオン電流強度に対する百分率)とそれを含むエミッタンスの関係を示す。この曲線は負イオンの種類、全負イオン電流強度等の動作条件によって変化する。第7図から理解できるようにDED P型イオン源とHPI G型イオン源はエミッタンスが小さいので有効な負

イオン電流は大きく、スパッタ型イオン源はエミッタンスが大きいので有効な負イオン電流は小さくなる。LCE型イオン源のエミッタンスは一般的にDEDP型イオン源のエミッタンスより大きい。

ブライトネスは単位位相空間当りの負イオン電流で表わされる。DEDP型イオン源、HP I G型イオン源はエミッタンスが小さく、全負イオン電流が大きいのでブライトネスが大きい。スパッタ型イオン源はエミッタンスが大きく、全負イオン電流があまり大きくないのでブライトネスは小さくなる。

4.5 イオン・エネルギーの拡がり

イオン・エネルギーの拡がりを持ったビームは運動量の拡がりを持っている。したがって、イオンエネルギーの拡がり大きいイオン源のビームの発散は大きい。DEDP型イオン源は約10eV、HP I G型イオン源は約50eV、LCE型イオン源は約50eV、スパッタ型イオン源は約10eVのエネルギーの拡がりを持っている。このイオンエネルギーの拡がりイオン源の動作条件によって大きく変動する。上記の数値は代表的な条件下での数値である。

4.6 イオン化効率

負イオン源に導入したイオン生成材料一定量に対して得られる負イオンの割合をイオン化効率といい、イオン生成材料として非常に高価な物質を使用する場合、回収する必要のある毒性の強い物質や放射性物質を使用する場合等にイオン化効率が問題となる。

DEDP型イオン源、HP I G型イオン源で各々水素と酸素をイオン化した場合0.005%～0.01%のイオン化効率である。

LCE型イオン源でヘリウムをイオン化した場合大体0.01%以下のイオン化効率である。

チタン金属に吸着させたトリチウムをスパッタ型イオン源でイオン化した場合¹²⁾ 大体0.1%程度以下のイオン化効率である。炭素の場合数%程度のイオン化効率である。

4.7 運 転 時 間

保守作業無しで行えるイオン源の積算運転時間をこの報告ではイオン源の運転時間と呼ぶ。この運転時間は種々の運転条件に依存して変化するが、大雑把な目安を与える為に代表的な運転条件での平均運転時間を議論する。各イオン源ごとにイオン源の運転を停止させる代表的な原因について以下に列記し、議論する。

DEDP型イオン源には熱陰極(フィラメント)の断線、引き出し孔の破壊、絶縁破壊等の原因がある。引き出し孔が破壊されるとこの両端の圧力差が減少する為にプラズマの生成と保持、ビームの引き出しが不安定となり、運転を続けることができなくなる。

運転が停止する原因の大部分はフィラメントの断線であるので長寿命フィラメントを開発する為の種々の試みがある。又、ガス導入口の位置を変更することによってフィラメントの寿命

が長くなるという報告¹³⁾もある。フィラメントの断線、引き出し孔の破壊は操作ミスを除くと主にスパッタリングによって発生すると考えられる。HP I G型イオン源には絶縁破壊、陰極の破壊、引き出し孔の破壊等の原因がある。固体蒸発炉を使用する時にはイオン生成材料の消耗と絶縁破壊が運転の停止の主な原因である。固体蒸発炉を使用しない時には陰極の破壊と絶縁破壊が主な原因である。

L C E型イオン源は大型で、正イオンと負イオンの為の2つの独立した光学系を持った複雑なイオン源で、運転を停止させる原因も多くある。正イオン源にデュオプラズマトロン型イオン源を使用した場合、その運転を停止させる原因はDED P型イオン源と同様である。荷電変換部の運転時間は蒸発炉のアルカリ金属の消費量により決まる。高電圧が印加されている部分ではアルカリ金属の付着により絶縁破壊がしばしば起こり運転を停止させる。

スパッタ型イオン源はL C E型イオン源と同様に大型で正負イオン用の2つの光学系、表面電離ガン、スパッタコーンとその駆動機構を持っている。IONEX 834型イオン源は12個のスパッタコーンを載せた円盤を持っており、このコーン1個の寿命は20 - 100時間であるので、12個全部で240 - 1200時間の運転が可能である。コーンの寿命はスパッタリングを行うビームの集束径、電流強度、コーン表面の状態等によって変化する。表面電離ガンは操作ミスがなければ逆流する電子と負イオンによるスパッタリングによってポーラスタングステンが破壊されるまで大体500 - 1000時間運転できる。しかし、ポーラスタングstenは極めてこわれやすいので、実際には操作ミスによるポーラスタングstenの破壊が表面電離ガンの寿命を更に短くする。表面電離ガンの傍熱ヒーターの断線もしばしば発生して運転を停止させる。イオン源内部の真空度は極めて良いので絶縁破壊は稀である。

第8表に各イオン源のいくつかの運転条件での運転時間をまとめてある。イオン源の運転時間を決める主要な原因の1つであるスパッタリングについて第5章で再度議論する。

4.8 保守の難易度

イオン源の保守がやさしいか難かしいかは元素の種類、負イオン電流強度、運転時間等と同様に極めて重要な特性事項の1つである。保守が困難な為に常に不十分な保守しか行えないイオン源は本来の性能よりも常に劣った性能を持っている事になる。

DED P型イオン源、HP I G型イオン源の保守作業は各々、タングステン単線フィラメントの交換とクリーニング、陰極の交換とクリーニングである。これらの保守作業は予備知識や経験の無い作業でも保守の手引を参照しながら容易に短時間でできる。酸化物を塗付したフィラメントを使用する場合にはタングステン単線フィラメントと比べて活性化の作業に手間と経験が必要である。

L C E型イオン源、スパッタ型イオン源は多量のアルカリ金属を使用する事、大型で複雑な構造を持ち全重量が各々百kg程度と数十kg程度ある事等の理由からこの2つのイオン源の保守作業は十分な保守の手引と保守用機器の整備が必要である。L C E型イオン源の保守作業はデュオプラズマトロン型正イオン源関係ではフィラメントの交換と活性化作業、及びクリーニング、それ以外の部分についてはリシウムの除去と水酸化処理、クリーニング、リシウムの再

充填等である。スパッタ型イオン源の保守作業はセシウムの除去と水酸化処理、クリーニング、セシウムの再充填等である。表面電離ガン、コーン、アイオナイザーヒーター、オープンヒーター等について定期的な交換が必要である。セシウムの取り扱いは不活性ガス、通常アルゴンガス雰囲気中で行う。窒素ガスはセシウムと化合物を作りポーラスタンングステン・アイオナイザーの目づまりをおこすので使用できない。

4.9 運転の難易度

DEDP型イオン源、HPIG型イオン源は運転経験の有無により運転時間が長くなったり短くなったりする可能性はあるが完備した運転の手引に従えば無経験者でも運転できる。

LCE型イオン源は始動操作手順に厳守事項が多い事、安定するまでに長時間の調整が必要である事等の理由から運転には相当の経験と常時の監視が必要である。

スパッタ型イオン源は非定常状態たとえば始動時にこわれ易い表面電離ガンの操作に注意しなければならない。しかし定常状態ではこのイオン源は極めて長時間安定に動作するので運転は容易である。

4.10 価 格

イオン源本体と主な交換部品について、1979年時点での価格の代表的な例を各イオン源毎にまとめた表が第9表である。本体価格は構造の複雑なイオン源ほど高くなる。交換部品の価格はイオン源により異なるが、特にスパッタ型イオン源の表面電離ガンが高価である。

第5表 各イオン源で負イオン生成可能な元素

イオン源名称	現在まで生成された元素	生成可能と考えられる元素
DEDP型イオン源	H B C N O F S Cl Br I	Al Si P Ga Ge As Se Sn Sb Te At U
HPIG型イオン源	H Li Be B C N O F Na Mg P S Cl K Ca Br I Au U	Al Si Ga Ge As Se Rb Sr Sn Sb Te Cs Ba At
LCE型イオン源	H He Li C O S Te	B N F Na Al Si P Cl K Ga Ge As Se Br Rb Sn I Cs U
スバタ型イオン源	H Li Be B C N O F Mg Al Si P S Cl Ca Sc Ti V Cr Mn Fe Co Ni Cu Zn Ge As Se Br Y Zr Nb Mo Rh Pd Ag Cd In Sn Sb Te I Cs La Ce Tm Ta W Re Pt Au Pb U	Na K Ga Rb Sr Tc Ru Ba Pr Nd Pm Sm Eu Gd Tb Dy Ho Er Yb Lu Hf Os Ir Hg Tl Bi Po At Fr Ra Ac Th Pa

第6表 負イオン電流強度

原子番号	元素記号	電子親和力	ガス放電プラズマを利用したイオン源	スパッタ型イオン源
1	H	0.75	H ⁻ 50-100(D), 20(H), H ⁻ 20-50(C)	H ⁻ 15-20
1	D	"	D ⁻ 50-100(D), 10(H), D ⁻ 20-50(C)	D ⁻ 15-20
1	T	"	T ⁻ 2-5(D)	T ⁻ 1-2
2	He	0.03	3, 4He ⁻ 2-10(C)	
3	Li	0.62	Li ⁻ 1(H), Li ⁻ 1-5(C)	Li ⁻ 1-2.8, LiO-0.14
4	Be	0.24	BeH ⁻ 0.3(H)	BeH ⁻ 0.5
5	B	0.3	B ⁻ 0.3-0.6, BH ₄ ⁻ 4-10(D) B ⁻ 0.2(H)	BO ⁻ 12, B ⁻ 2.3, B ₂ -2.2
6	C	1.2	C ⁻ 0.6-2(D), CO ⁻ 1.2(H) , C ⁻ 3-4(C)	C ⁻ 25-50, C ₂ -30,
7	N	-0.12	NH ₂ ⁻ 10(D), CN ⁻ 30(H)	NH ₂ ⁻ 1, NH ⁻ 0.7,
8	O	1.47	O ⁻ 20-50(D), O ⁻ 10(H), O ⁻ 10-15(C)	O ⁻ 50
9	F	3.44	F ⁻ 1-2(D), F-100(H)	F-40-50
11	Na	0.7	Na-0.5(H)	
12	Mg	0.32	MgH-0.3(H)	MgH ₃ -1.65, MgH-0.5 MgO-1.05
13	Al	0.52		AlO-4, Al-0.2
14	Si	1.39		Si-27, Si ₂ -9
15	P	0.78	PH ₂ -2(H)	P-0.6
16	S	2.08	S-1-2(D), S-50(H), S-1-2(C)	S-25
17	Cl	3.62	Cl-50-100(D), Cl-50 (H)	Cl-25
19	K	0.6	K-0.2(H)	
20	Ca	-1.88	(Ca-0.2(H)) *	CaH ₃ -0.6, CaO-0.34 CaH-0.6
21	Sc	-0.14		ScO-0.35, Sc-0.016, ScH-0.3, ScO ₂ -0.024
22	Ti	0.3		TiO-0.8, TiH-0.6, Ti-0.005 TiN-0.11
23	V	0.7		V-0.11, VH-0.2, VN-0.2, VO-0.85
24	Cr	0.85		Cr-0.11, CrH ₂ -0.45, CrO-0.53, CrO ₂ -0.47

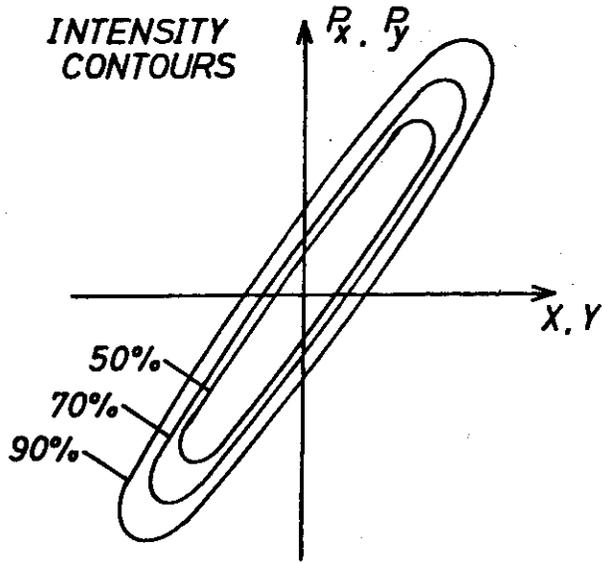
* CaH と考えられる。

25	Mn	-1.07		MnH-0.027, MnO-0.15
26	Fe	0.5	Fe-2-3(C)	Fe-0.15, FeH-0.65, FeO-1.05
27	Co	1.0		Co-0.90, CoH-0.025, CoO-0.5
28	Ni	1.4		Ni-6.6, NiH-0.01, NiO-0.25
29	Cu	1.8		Cu-3.5-7.0
30	Zn	0.09		ZnH-0.002, ZnO-1.75
31	Ga	0.4		
32	Ge	1.44		Ge-1.1, Ge2-0.5
33	As	1.07		As-1.0
34	Se	2.12		Se-7.0
35	Br	3.55	Br-50(D), Br-40(H)	Br-5.0
37	Rb	0.2		
38	Sr	-1.35		
39	Y	<0		Y-0.029, YH2-0.3, YH4-0.17, YO-0.28
40	Zr	0.7		Zr-0.001, ZrH-0.04, ZrO-0.27
41	Nb	1.23		Nb-0.1, NbH2-0.3, NbN-0.53, NbO-0.85, NbO2-0.55
42	Mo	1.15		Mo-0.001, MoH2-0.005, MoO-0.045, MoO2-0.07, MoO3-0.14
43	Tc	1.0		
44	Ru	1.45		
45	Rh	1.6		Rh-0.43, RhH-0.12, RhO-0.78, RhO2-1.05
46	Pd	1.1		Pd-0.001, PdH-0.03, PdO-0.15, PdO2-0.07
47	Ag	2.0		Ag-0.45, AgO-0.2
48	Cd	-0.7		CdO-0.18
49	In	0.4		In-0.05, InO-7.0
50	Sn	1.03		Sn-0.05, Sn2-0.15, SnO-0.02, SnO2-0.12

51	Sb	0.9		Sb-0.32, Sb ₂ -1, SbO-0.39, SbO ₂ -1.10
52	Te	2.1	(Te-150-200(C))	Te-1.8
53	I	3.33	I-50(D), I-50(H),	I-26
55	Cs	0.25		Cs-0.01, CsC ₄ -0.15, CsC ₆ -0.12
56	Ba	-0.49		
57	La	0.55		La-0.008, LaH ₂ -0.06, LaH ₄ -0.075, LaO-0.25, LaO ₂ -0.57
58	Ce	uk		Ce-0.002, CeH ₂ -0.10, CeH ₄ -0.10, CeO ₃ -0.57
72	Hf	-0.63		
73	Ta	0.5		Ta-0.001, TaH ₂ -0.015, TaN-2.0, TaO-0.7, TaO ₂ -6.0, TaO ₃ -0.7
74	W	0.5		W-0.01, WN-0.37, WO-0.065, WO ₂ -0.52, WO ₃ -0.80
75	Re	0.2		Re-0.01, ReH-0.015, ReO-0.85, ReO ₂ -1.26, ReO ₃ -0.76
76	Os	1.4		
77	Ir	1.97		
78	Pt	2.56		Pt-3.3
79	Au	2.0	Au-0.4(H)	Au-12
80	Hg	-0.45		
81	Tl	0.5		
82	Pb	1.2		Pb-0.11, PbO-0.15, PbO ₂ -0.2
83	Bi	0.68		
84	Po	1.5		
85	At			
87	Fr			
88	Ra			
89	Ac			
90	Th			
91	Pa			
92	U	+	UF ₂ -2(H)	U-0.001, UH ₂ -0.003, UH ₄ -0.003, UN-0.42, UO-0.16

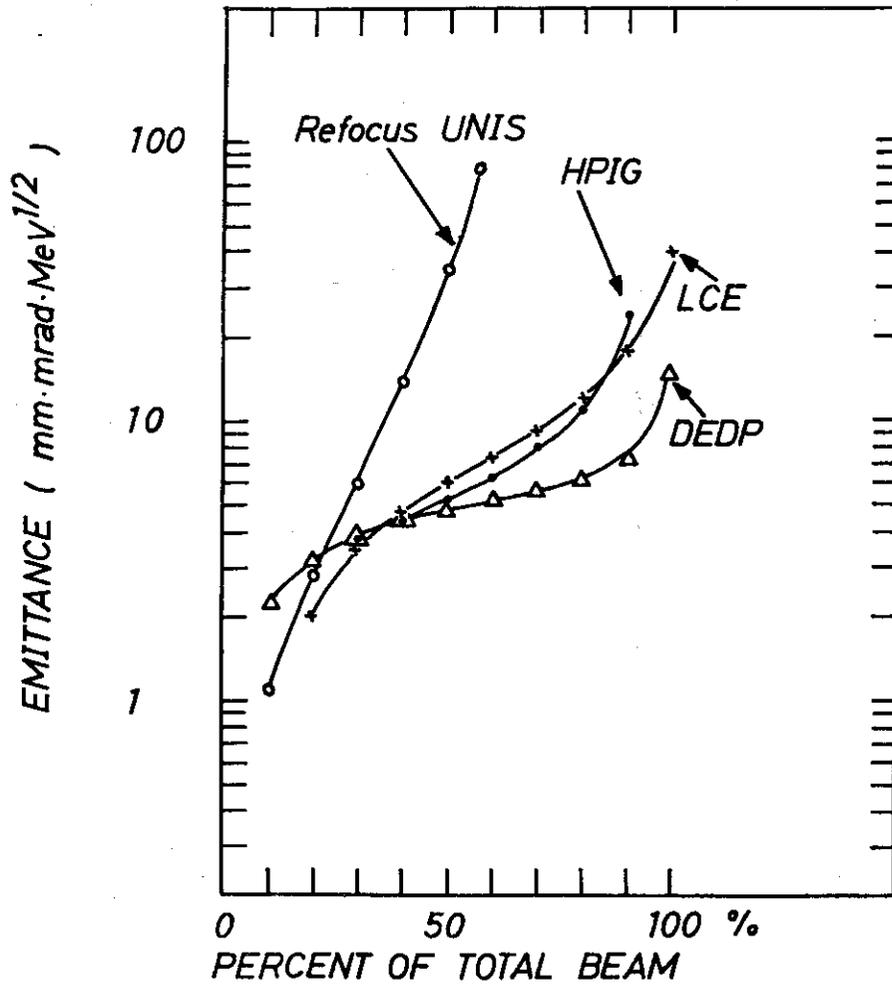
第7表 負イオン電流強度による元素の分類

負イオン電流強度の範囲	元 素 名
50 μ A以上	H C O F S Cl Br Te I
50 μ A - 10 μ A	B N Si Au
10 μ A - 5 μ A	He Ni Cu Se In
5 μ A - 1 μ A	Li Mg Al P Fe Zn Ge Rh Sb Ta Re Pt
1 μ A未満	Be Na K Ca Sc Ti V Cr Mn Co As Y Zr Nb Mo Pd Ag Cd Sn Cs La Ce Tm W Pb U



第6図 エミッタンス図

X, Y軸方向の位置 (X, Y) と運動量 (P_x, P_y) の位相空間上でのイオン電流強度分布を等高線で表わした図。この等高線の百分率は部分イオン電流の割合を示す。



第7図 エミッタンスと部分イオン電流の割合

第8表 イオン源の運転時間

イオン源名称	運 転 条 件	運 転 時 間
DEDP型 イオン源	H ⁻ , 酸化物フィラメント使用時	2-3週間
	O ⁻ , "	1-2日
	O ⁻ , タングステン単線フィラメント使用時	8時間
	Cl ⁻ , 酸化物フィラメント使用時	8時間
HPIG型 イオン源	気 体	1-3週間
	固体蒸発炉使用時	60時間
LCE型 イオン源	正イオン源のみの運転時間	DEDP型イオン源と同様
	リシウム交換間隔	5-7日
スパッタ型 イオン源	セシウムガン以外の運転時間	500-1000時間
	5g-10gr Cs 充填時 スパッタ・コーン(1個)	20-100時間

第9表 価 格 (1979年価格)

イオン源名称	本体価格(千円)	交 換 部 品 価 格 (円)
DEDP型 イオン源	5,000 —7,000	タングステン単線フィラメント 1本 66
		トリウムタングステンフィラメント 1本 300
		酸化物フィラメント 1本 10,000
		アノードディスク 1枚 1,000
HPIG型 イオン源	5,000	タンタルカソード 2枚1組 30,000
LCE型 イオン源	14,000	タングステン単線フィラメント 1本 66
		トリウムタングステンフィラメント 300
		酸化物フィラメント 10,000
スパッタ型 イオン源	10,000	表面電離ガン 1,725,000
		アイオナイザー 495,000
		オープンヒーター 28,500
		アイオナイザーヒーター 90,000

5. 負イオン源の構成材料とイオン生成材料

5.1 蒸気圧

DEDP型イオン源, HP I G型イオン源, L C E型イオン源は通常気体をイオン生成材料として使用する。HP I G型イオン源は固体蒸発炉を持っているので固体でも 1020°C 程度以下で 10^{-2} トールの蒸気圧を持つ物質を使用できる。スパッタ型イオン源は通常固体をイオン生成材料として使用するが、コーンに吸着させる事によって気体もイオン生成材料として使用できる。従って、ある物質の蒸気圧はその物質が各イオン源でイオン生成材料として使用できるか否かを決める大きな要因と言える。

水素からビスマスまでの単体元素を 10^{-2} トールでの沸点で分類した表が第 10 表である。これらの単体元素のうち 1020°C 以下で 10^{-2} トールの蒸気圧を持つ物質はHP I G型イオン源で使用可能である。第 11 表は 20°C 程度以下で 20 トールの蒸気圧を持つ化合物と 20 トールでの沸点の表である。これらの化合物は気体をイオン生成材料として使用できるイオン源で使用可能である。但し、通常は入手と取り扱いの便が良い高压容器で市販されている気体化合物を使用する。これらは第 12 表にまとめてある。

5.2 スパッタリング

第 8 図は銅のターゲットを 45keV の種々の元素のイオンで衝撃してスパッタ率を調べた結果⁶⁾である。横軸はイオンの原子番号、縦軸はスパッタ率(入射粒子 1 個当りのスパッタされターゲット粒子の個数)である。一般的にスパッタ率はイオンの原子番号の増加に従って増加する。従って、原子番号のより大きな元素のイオンをプラズマ中で生成すると、DEDP型イオン源, HP I G型イオン源, L C E型イオン源においてスパッタリングによるフィラメントの断線, カソードの破壊等はより激しくなり、これらのイオン源の運転時間がより短くなる。イオン源内部のイオンのエネルギーは数百 eV から数 keV である。このエネルギーでのスパッタ率の傾向は 45keV の場合とほぼ同じである。

第 9 図は種々のターゲット物質を Kr^+ で衝撃した場合のスパッタ率を調べた結果⁶⁾である。スパッタ率はターゲットの原子番号により大きくかつ周期的に変動している。例えば Ta, Mo 等のスパッタ率の低い物質でフィラメント, カソード, 引き出し孔等を作れば, DEDP型イオン源, HP I G型イオン源, L C E型イオン源の運転時間は長くなる。スパッタ型イオン源ではスパッタ率の高いコーンを作れば大きなイオン電流を得やすくなる。

5.3 腐食

電子親和力が大きな VI B, VII B 族元素を含むイオン生成材料とその分解生成物, 及びその他

の腐食性物質等は化学的に極めて活発で金属等のイオン源構成材料を腐食する。これらの物質とイオン源構成材料から生じたサビ等の化学反応生成物は絶縁破壊の原因となる。腐食性のイオン生成材料を使用するとDED P型イオン源とLCE型イオン源のフィラメントやHP I G型イオン源のカソードの寿命は化学反応を伴うスパッタリングによって極めて短くなる。又、直接イオン源に被害を与えない場合でも真空系（ロータリーポンプ、ガスケット類、高圧側真空バルブ）やガス導入系等の劣化、腐食等が発生しやすくなる。第13表に腐食性のイオン生成材料の代表例がまとめてある。

これらの困難に対して一定の効果が得られたと報告されている対策を以下に列挙する。

- ① イオン生成材料としてできるだけ腐食性の無い化合物を使用する。但し、この場合も多数の分解生成物が腐食性を持っている。
- ② イオン生成材料が強い腐食性を持つ場合はガス導入系にパーズ用バルブを設置し、ガス導入配管に腐食性物質が残らない様に空気曝露する前に必ずパーズを行う。大部分の腐食性ガスは水分が存在しない場合は金属等を腐食しない。
- ③ ガス導入系、イオン源本体、真空系の各部分をできるだけ腐食に強い材料（ステンレス、モネル等）で作る。又は、腐食に強い材料（テフロン等）で覆う。
- ④ イオン源本体、イオン光学系、ガス導入系、真空系等の部品交換、クリーニング等を頻繁に行う。
- ⑤ 腐食性イオン生成材料が凝縮する為に被害が出やすいロータリーポンプの対策は、
 - 1) ロータリーポンプの頻繁な交換
 - 2) ロータリーポンプ内面のテフロンコーティング
 - 3) ロータリーポンプオイルの頻繁な交換、循環、口過、連続排出（垂れ流し）
 - 4) ロータリーポンプを無休連続運転する事により腐食性物質の凝縮を最少限におさえる、等がある。

5.4 有害物質

イオン源の保守、運転に種々の有害物質を使用する。第14表と第15表は有害なイオン生成材料の代表的な例である。イオン生成材料自身は無害でもイオン源内に同時に存在するサポートガス、バランスガス、アウトガス、リークガス等の他の物質と反応して有害な物質が生成される場合がある。この代表的な例としてプラズマ中で窒素と炭素化合物が反応して容易に作られる炭化窒素（ CN^- ）がある。何らかの形で放電を行っているイオン源では空気のリークがあれば必ず CN^- が生成される様である。負イオン源のイオン生成材料として多用されている大部分のフロン系化合物は無害か極めて害が少ないが、そのほとんどの分解生成物は極めて有害である。

5.5 アルカリ金属とアルカリ土金属

周期律表（第2表）に記載されているアルカリ金属、土金属元素のうちイオン源で単体で使

用される元素にはLi, Na, K, Rb, Cs, Be, Mg, Ca, Sr, Baがある。これらの元素のうちBeとMgを除く全元素は水と極めて激しく反応し、反応熱と水素ガスを伴いながら水酸化物を生成する。この為に空气中に曝露されたこれらの元素は自然発火して爆発したり、火災を伴って反応が進行したりする。LCE型イオン源とスパッタ型イオン源には1度に5gr程度以上のアルカリ金属、土金属を充填する。イオン源へのこれらの元素の充填、回収、除去作業は空気にできるだけ曝露しない様にアルゴン等の希ガス雰囲気中で行う必要がある。

アルカリ金属、土金属の除去処理する時にはイオン源全体を防爆構造を持った安全な場所に隔離した後、空气中的水分とイオン源内部に付着したこれらの元素を除々に反応させ、水洗いして除去する。スパッタ型イオン源で用いるCsにはそれ自体に毒性があるのでCsの酸化物や水酸化物の人体への吸収を防ぐ配慮が必要である。これらの元素の水酸化物は強いアルカリ性であるので皮フに付着すると化学火傷や腐食を起こすので十分な注意と防護用具が必要である。

第10表 10^{-2} トールでの単体元素の沸点

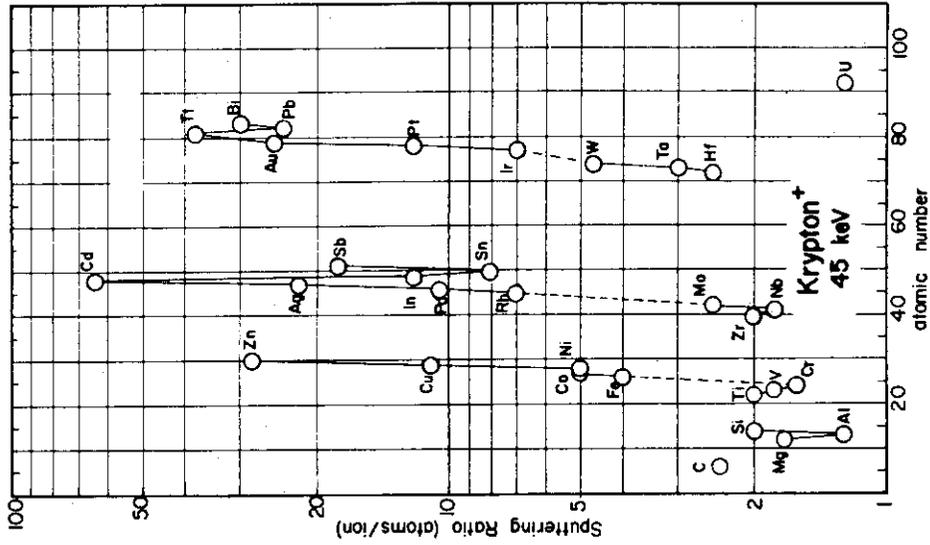
沸 点 の 範 囲	1020 °C以上の元素	20 °C以上で 1020 °C未満	20 °C未満の元素
単 体 元 素 の 具 体 例	B C Al Si	Li Be Na Mg	H He N O
	Sc Ti V Cr	P S K Ca	F Ne Cl Ar
	Fe Co Ni Cu	Mn Zn As Se	Br Kr I Xe
	Ga Ge Y Zr	Rb Sr Cd In	Hg
	Nb Mo Tc Ru	Sn Sb Te Cs	
	Rh Pd Ag La	Ba Sm Eu Tm	
	Ce Pr Nd Pm	Yb Tl Pb Bi	
	Gd Tb Dy Ho		
	Er Lu Hf Ta		
	W Re Os Ir		
	Pt Au		

第11表 20°C以下で20トールの蒸気圧を持つ化合物

沸 点 の 範 囲	20°C以下で20トールの蒸気圧を持つ化合物の化学形
20°C ——— 0 °C	BBr_3 , CCl_3NO_2 , HNO_3 , ICl , IF_5 , PH_4I , SnCl_4
0°C ——— -50 °C	Br_2 , CNBr , CCl_4 , CS_2 , Cl_2O_7 , GeCl_4 , HN_3 , HCN , H_2S_2 , HCl_3 , NH_4CN , NH_4HS , NO_2 , N_2O_5 , PCl_3 , PH_4Br , SO_3 , SOCl_2 , SO_2Cl_2 , SiCl_4 , UF_6
-50°C ——— -100 °C	BCl_3 , CBr_2F_2 , CCl_2F_2 , CClN , CCl_2O , COSe , ClO_2 , HF , HI , H_2Se , NH_3 , NOCl , NO_2Cl , SO_2 , SiCl_2F_2 , SiCl_3F
-100 °C 以 下	BF_3 , CBrF_3 , CClF_3 , CF_4 , CNF , CO , CO_2 , COS , F_2 , H_2 , HBr , HCl , H_2S , N_2 , NF_3 , NO , N_2O , O_2 , O_3 , PH_3 , SiClF_2 , SiF_4 , SnH_4

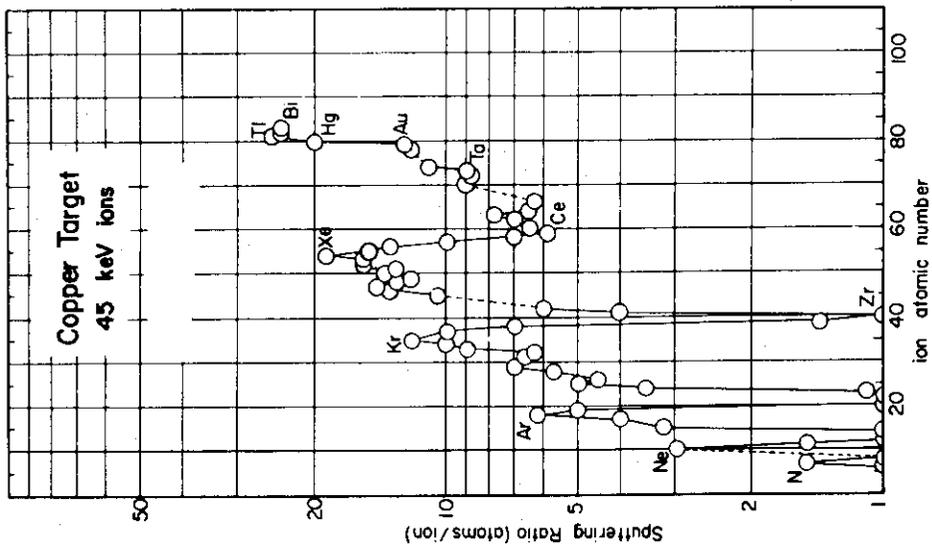
第12表 高圧容器で市販されている気体

元素名	化 学 形
H	HF, HCl, HBr, HI, H ₂ S, NH ₃
B	BF ₃ , B ₂ H ₆
C	CN, CO, CO ₂ , C ₂ H ₃ Cl, COS
N	NO, N ₂ O, NO ₂ , CN, NH ₃ , HCN
O	NO, NO ₂ , CO, CO ₂ , COS
F	HF, BF ₃ , CHF ₃ , CCl ₃ F, CCl ₂ F ₂ , CClF ₃ , CHClF ₂
Al	(CH ₃) ₃ Al
Si	SiF ₄ , SiH ₄ , SiH ₂ Cl ₂
P	PH ₃ , PF ₅ , PCl ₃ , PBr ₃
S	SO ₂ , SO ₃ , SF ₄ , SF ₆ , H ₂ S, COS, (CH ₃) ₂ S
Cl	HCl, BCl ₃ , PCl ₃ , CCl ₃ F, CCl ₂ F ₂ , CClF ₃ , CHClF ₂
Ga	(CH ₃) ₃ Ga
Ge	GeH ₄ , GeCl ₄ , GeBr ₄
As	AsH ₃
Se	H ₂ Se
Br	HBr, CH ₃ Br, C ₂ H ₅ Br, CF ₃ Br
I	HI, CF ₃ I
U	UF ₆



第9図 スパッタ率の標的物質依存性

衝撃イオンはKr, 衝撃エネルギーは45keVである。
横軸は標的物質の原子番号である。



第8図 スパッタ率の衝撃イオン依存性

ターゲットは銅, 衝撃エネルギーは45keVである。
横軸は衝撃イオンの原子番号である。

第13表 腐食性イオン生成材料

腐食性の強さ	腐食性イオン生成材料の化学形
強腐食性	HF, F ₂ , HCl, Cl ₂ , HBr, Br ₂ , HI, I ₂ , SF ₄ , SiH ₂ Cl ₂ , PF ₅ , BF ₃
中程度の腐食性	NH ₃ , H ₂ S, SO ₂ , NO, NO ₂
弱腐食性	AsH ₃ , PH ₃ , B ₂ H ₆ , SiH ₄ , GeH ₄ , H ₂ Se

第14表 有害なイオン生成材料(気体の場合)

毒性	有害なイオン生成材料の化学形(許容量, 単位ppm)
猛毒	AsH ₃ (0.05), HCl (5), Cl ₂ (1), PCl ₃ (0.5), BBr ₃ (1), NO (25), PBr ₃ , BF ₃ , SF ₄ , SiF ₄ , B ₂ H ₆ (0.1), SbH ₃ (0.1), H ₂ Se (0.05), (CH ₃) ₃ Al, (CH ₃) ₃ Ga, SO ₂ , NO ₂ , PH ₃ (0.3), H ₂ S (10), HBr (3), SiH ₄ (0.5)
有毒	NH ₃ (25), CO (50), C ₂ H ₃ Cl (検出されない事), CH ₃ Cl (100), BCl ₃ , C ₂ H ₆ Br (200), CH ₃ Br (15), COS (10), HF (3), CCl ₄ (10), CHCl ₃ (50)
危険	C ₂ H ₆ Cl (1000), CO ₂ (5000), CCl ₃ F (1000), CCl ₂ F ₂ (1000), CClF ₃ (1000), CBrF ₃ (1000), CHCl ₂ F (1000), CHClF ₂ (1000), SF ₆ (1000), (CH ₃) ₂ S, SiH ₂ Cl ₂

第15表 有害なイオン生成材料(固体の場合)

化 学 形	許 容 量
CrO ₃	0.1 mg/m ³
PCl ₅	1 "
ZnO	5 "
CdO	0.1 "
As ₂ O ₃	0.5 "
Hg化合物	0.1 "
Pb	0.15 "
Ni	1 "
V ₂ O ₅	0.1 "
Mn	5 "
P	0.1 "
Be	0.002 "
Sb	0.5 "
Se	0.2 "
TiO ₂	15 "
Fe ₂ O ₃	10 "
フッ化物	2.5 "
シアン化物	5 "

6. 残された問題点

現在市販されているタンデム型静電加速器の負イオン源について大雑把な性能比較が第16表にまとめられている。第4章の議論と、この表からわかる様に特に問題となるのは次の2点である。

① 大部分の元素について負イオン電流強度が不十分である事。

第7表によればイオン源出口で得られる最大負イオン電流強度が $10\mu\text{A}$ 以上である元素は13種のみである。これら以外の元素の負イオンを十分な電流強度で得る為には、i) 負イオンを生成し易いイオン生成材料の開発、ii) 大電流強度で高輝度のイオン源の開発が必要不可欠である。

② Heを除く希ガス元素の負イオン生成が不可能である事。

Heを除く希ガス元素5種類(Ne, Ar, Kr, Xe, Rn)は化合物を作らず、又電子親和力が負である為に長い間、負イオン生成は不可能と考えられて来た。しかしながら、最近KrとXeには数種類の化合物が合成されている¹⁴⁾ので、これらの化合物の電子親和力が正であればKrとXeの負イオンは生成が可能で、タンデム型静電加速器によって加速可能となる。これら希ガス化合物の電子親和力は最近まで測定されていなかった。しかし最近報告されたXeF₂と電子の衝突の研究¹⁵⁾によれば、XeF⁻の電子親和力は3.8eVで、この負イオンは極めて安定である。同様にKrのフッ化物も負イオンとして安定である事が期待される。現在、原研において希ガス化合物負イオンをイオン源によって生成し、引き出す事を試みているが、腐食等の取扱い上の困難が解決されれば近い将来にKrとXeのタンデム型静電加速器による加速が実用になるかもしれない。

NeとArはエキシマーレーザーで良く知られている様に 10^{-9} 秒程度の極めて短い寿命でフッ化物が生成、崩壊する¹⁶⁾が、この寿命が加速所要時間に比較して4桁程度短かいのでタンデム型静電加速器での加速は困難である。

謝 辞

高崎研究所鷲野正光氏から電子親和力の最新の情報をいただき、又、原稿の推敲にあたり物理部の鹿園直基、大野善久、丸山倫夫の各氏から多くの有益な助言をいただきました。ここに感謝の意を表わします。

第16表 イオン源の性能比較

イオン源名称 特性事項	DEDP型 イオン源	HPIG型 イオン源	LCE型 イオン源	スパッタ型 イオン源
生成可能な元素の 種類	少ない	割合に多い	HeとLi及び DEDPで可 能な元素	希ガス元素以外 の全元素
使用可能なイオン 生成材料	気 体	気体と低融点の 固体	気 体	固体, 気体
負イオン電流強度	大きい	中程度に大きい	中程度に大きい	大部分の元素に ついては小さい。 一部の元素では 中程度に大きい。
安 定 度	中程度に不安定	中程度に不安定	不安定	安 定
エミッタンス ブライトネス	小さい 明るい	中程度に小さい 中程度に明るい	中程度に小さい 中程度に明るい	大きい 暗 い
運 転 時 間	短 い	長 い	短 い	長 い
保守の難易度	容 易	容 易	困 難	困 難
運転の難易度	容 易	容 易	困 難	中程度に困難
本 体 重 量	軽 い	軽 い	重 い	中程度に重い
本体価格(千円) (電源等を含まず)	5,000 -7,000 安 価	5,000 安 価	14,000 高 価	10,000 中程度に高価

文 献

- (1) Massey H. : "Negative Ions", Cambridge University Press, Cambridge, 3rd edition, 1(1976).
- (2) Rosenstock H. M., K. Draxl, B. W. Steiner and J. T. Herron : Journal of Physical and Chemical Reference Data, Supplement No. 1, 6(1977).
- (3) Rose P. H. and A. Galejs : "Progress in Nuclear Techniques and Instrumentation", North-Holland, Amsterdam, 2, 60(1967).
- (4) Heinicke E. and H. Baumann : Nucl. Instrum. Methods, 74, 229(1969).
- (5) Doucas G., H. R. Mck. Hyderand A. B. Knox : Nucl. Instrum. Methods, 124, 11(1975).
- (6) Wilson R. G. and G. R. Brewer : "Ion Beams", John Wiley and Sons, New York, 26(1973)
- (7) Abdullayeva M. K., A. K. Ayukhanov and U. B. Shamsiyev : "Determination of the Negative Ion Yield of Copper Sputtered by Cesium Ions" in Ion Surface Interaction, Sputtering and Related Phenomena, edited by R. Behrish, W. Heiland, W. Poschanvieder, P. Staib and H. Verbeek, Gordon and Breach Science Publishers (1973).
- (8) Haeberli W. : "Polarized Beams", in Nuclear Spectroscopy and Reactions edited by J. Cerny, Academic Press, New York and London (1974).
- (9) Page F. M. and G. C. Goode : "Negative Ions and Magnetron" : John Wiley and Sons, London (1969).
- (10) England J. B. A. and H. G. Price : Daresbury Laboratory Report DL/NSF/R14(1977).
- (11) Middleton R. : Nucl. Instrum. Methods 144, 373(1977).
- (12) Middleton R., C. T. Adams and R. V. Kollarits : Nucl. Instrum. Methods 151, 41(1978).
- (13) Newsletter, Nuclear Structure Facility, Daresbury Laboratory No. 33, May (1977)
- (14) Hyman H. H. : "Noble Gas Compounds", The University of Chicago Press (1966).
- (15) Begun G. M. and R. N. Compton : International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics, 30, 379(1979).
- (16) Rice J. K., A. K. Hays and J. R. Woodworth : Appl. Phys. Lett. 31, 1, 31(1977).