重イオンビームを用いた基礎・応用研究

百田 佐多生* 佐竹 信一** 谷口 淳**

金澤 光隆*** 北川 敦志*** 佐藤 真二*** (受領日:2010年4月24日)

* 高知工科大学システム工学群 〒 782-8502 高知県香美市土佐山田町宮ノ口 185

** 東京理科大学基礎工学部電子応用工学科 〒 278-8510 千葉県野田市山崎 2641

*** 放射線医学総合研究所 〒 263-8555 千葉県千葉市稲毛区穴川 4-9-1

E-mail: *momota.sadao@kochi-tech.ac.jp

要約:重イオンビームは、幅広い分野で興味深い研究対象であり、同時に強力なツールでもある。1 MeV 以下の低エネルギーの重イオンビームは、その照射効果に関する知見にもとづいて加工・改質を行うために利用されている。物質との反応性に富む多価重イオンビームは、近年のイオン生成技術の発展によって基礎研究から工業分野への応用が可能な状況になってきた。高知工科大学に建設した多価重イオンビーム照射装置を用いて、多価イオンの照射効果とその応用に関する研究を行った。一方、核子当たり 100 MeV 以上の高エネルギーの重イオンビームは、原子・原子核など微細な世界を研究するためのプローブとして利用されている。高エネルギー重イオンビームに特有な原子核反応である入射核破砕過程の反応メカニズムを解明するために、放射線医学総合研究所の HIMAC 加速器施設で実験研究を行った。

1. はじめに

重イオンビームは、幅広い分野で研究対象ある いはツールとして利用されている。重イオンビー ムによって引き起こされる現象は多岐にわたり、 その運動エネルギーや照射条件によって様相が大 きく変化する。

エネルギーが 1MeV 以下の重イオンビームに関 しては基礎研究が進んでおり、その照射効果を利 用した加工や改質プロセスといった技術が実用化 されている⁽¹⁾。ナノテクノロジーの分野では、加 工・改質サイズの細密化が進んでいる一方で、特 に MEMS の分野などでは材料により高度な機能 を付与するため表面方向に加えて深さ方向にも複 雑な形状を形成することが求められている。近年 のイオンビーム生成技術の進展により、原子から 多数の電子をはぎ取ることのできる多価イオン源 がコンパクトになり製品化されるようになった。 多価重イオンは通常の加工・改質に利用される1 価のイオンに比較して高い反応性を持つ。筆者たちは高知工科大学に建設した多価重イオンビーム 照射装置⁽²⁾を利用して、多価イオンの照射効果と その応用に向けた研究を行ってきた。

エネルギーが核子あたり 100 MeV 以上の重イ オンビームに関しては、装置が巨大で高価である ことから、主に原子・原子核などの基礎研究に供 されてきた。最近では、この基礎研究によって蓄 積された知見に基づいて、重イオンビームを用 いたガン治療など、実用化に向けた取り組み⁽³⁾が 始まっている。また、理化学研究所の RI ビーム ファクトリーなど幅広い応用を見据えて建設され た施設が稼働を始めている。筆者たちは核子あた り 100MeV~300MeV の重イオンビームを用いて、 原子核反応のメカニズムの研究を行ってきた。こ の研究は原子核反応の解明に寄与するのみなら ず、宇宙放射線が人工衛星やその乗組員に及ぼす 影響を推定する際にも必要な核データとしての役 割を果たす。

本報では、多価重イオンビームを用いた照射効 果に関する研究と、核反応メカニズムに関する研 究の結果を報告する。

2.1 MeV 以下の多価重イオンビームを用 いた研究

高知工科大学に建設された多価重イオンビーム 照射装置では、PANTECHNIK 社の ECR イオン源 である NANOGAN を用いて多価重イオンを生成 している。この装置を用いると、Ar であれば9 価までのイオンを100 kV の電圧で加速してビー ム化することができる。9 価の Ar イオンは、1 価の Ar イオンの約 100 倍となる1 keV という大 きなポテンシャルエネルギーを運動エネルギーに 加えて有する。この多価イオンが物質に照射され ると、ポテンシャルエネルギーが被照射物質に付 与され、特異な照射効果を引き起こす⁽⁴⁾。この多 価イオン特有の照射効果に関する研究は、実験・ 理論の両面から進められているものの発展途上で あり、応用を意識した開発研究は進んでいないと いう現状である。

2.1 Si 中に生成される格子欠陥

イオンビームの照射によって結晶中に導入され る格子欠陥は、加工や改質の基本となる現象であ る。イオンの価数が照射された Si 結晶中での格 子欠陥生成に及ぼす影響を測定するために、筆者 らは Ar イオンビームを Si 結晶に照射し,結晶中 に生成された格子欠陥の深さ分布を測定した⁽⁵⁾。 Si の <1 0 0> 面に 6 価と 9 価の Ar イオンビー



 図1:シリコン結晶中に生成された格子欠陥の深 さ分布⁽⁵⁾斜線部分は、de-channeled 成分が格子 位置の Si によって散乱された効果に対応する。

ムをいずれも 100 keV でほぼ等量照射し、結晶表 面に欠陥を導入した。この欠陥の深さ分布を測定 するために、RBS-channeling 法⁽⁶⁾ を利用してスペ クトルを観測した。観測された RBS-channeling ス ペクトルから Ar イオンの照射に起因する部分を 抽出し、価数による変化に注目した(図1)。その 結果、欠陥生成が多価イオンの照射によって促進 され,この効果が表面付近で顕著であることが示 唆された。

2.2 Ar ビームによる Si 表面の隆起現象

イオンビーム照射によって Si 中に生成された 格子欠陥は結晶のアモルファス化を誘起し、体積 変化の原因となることが分かっている。この現象 をより詳細に観測するために、1 価の Ar イオン を Si 結晶に照射し、表面の形状変化と照射量の 関係を測定した⁽⁷⁾。図2のように、Si 表面は隆起 し、その高さは Ar イオンの照射量とともに増加 することが分かった。このように照射量が少ない 領域では、スパッタリング過程による切削効果よ りもアモルファス化による膨張効果が優勢である ことを示している。この実験結果は、分子動力学 にもとづく微視的計算で良く再現することができ た。今後は、多価の Ar イオンを用いて同様な測 定を行い、2.1 で観測された多価効果と関連づけ る予定である。



図 2: Ar イオンの照射量と Si の隆起高さの関係⁽⁷⁾

2.3 Ar ビームによる銀薄膜のスパッタリング 今までの研究で、多価イオンが持つポテンシャ ルエネルギーは、主に表面付近の狭い領域で付与 されることが分かってきた。スパッタリングは表 面数 nm の領域で起こる現象で、多価イオン効果 を観測するのに適している。

この研究を開始するために、スパッタリング率

を測定する手法を確立した。スパッタリング率が 比較的大きい銀の薄膜にArビームを照射し、照 射後の薄膜の質量減少量を測定した⁽⁸⁾。図3のよ うに、銀薄膜の質量減少量と照射量は線形の関係 になり、スパッタリング率をその傾きとして求め ることができた。

次に、イオンの価数がスパッタリング率に及ぼ す影響を知るために、1価から9価までのArイ オンを銀薄膜に照射し、各価数におけるスパッタ リング率を測定した⁽⁹⁾。この測定結果を1価のス パッタリング率で規格化すると図4のようにな り、価数とともにスパッタリング率が増加する傾 向が観測された。今回の測定では、誤差棒の長さ に象徴されるように、測定結果に大きな不確定度 が残ってしまった。この不確定度の主な原因は、 1)質量変化の測定精度と2)解析時に使用した補 正処理の二点である。今後はこの2つの問題を解 決することによって、より信頼度の高い測定を行 う予定である。





図3:Arイオンの照射による銀薄膜の質量変化⁽⁸⁾

図4:銀薄膜のスパッタリング率の価数依存性⁽⁹⁾

核子あたり 100 MeV 以上の高エネルギー重イ オンビームが物質中に入射すると、入射核破砕過 程と呼ばれる原子核反応が起こる。この反応は自 由な核子 - 核子衝突の重ね合わせとして記述でき る直接反応過程で、反応によって生成される二次 粒子をビームとして再利用できる特徴を持つ。近 年では多様な同位体を含む二次ビームから特定の 核種のみを分離し、工学的分野や医療・生物の分 野に応用されるようになってきた。また、高エネ ルギー重イオンを成分として持つ宇宙放射線が、 宇宙船やその乗組員に及ぼす影響を評価する上で も重要な反応過程である。筆者らは、核子あたり 100~300 MeV の重イオンビームを用いて、入射 核破砕過程から生成される二次粒子の生成メカニ ズムを解明してきた。

ここ数年は放射線医学総合研究所の HIMAC 加速器から供給される核子あたり 290 MeV の Ar, Kr ビームを用いて、二次粒子の生成率とその運動量 分布を系統的に測定してきた⁽¹⁰⁾。破砕片(二次粒 子)のビーム方向の運動量(P_L)は、図5のように 標的核との反応時に作用する相互作用によってわ ずかではあるが減速し、有限の広がりが生じて いる。減速効果($-\Delta P_L$)と破砕片の質量(A_F)の間に は、図6のように明確な規則性が見いだされた。 図5から分かるように、低運動量側の P_L 分布の 幅は、破砕片の種類によらず高運動量側に対して 20~30% 広くなることが分かった。高運動量側の 分布幅を Goldhaber 模型⁽¹¹⁾ で定義される規格化さ れた分布幅 σ_0 に変換すると、図7のように破砕



図 5: Kr ビームから生成された⁴³Caの運動量分布 青線は一次ビームの速度、赤線は破砕片の分 布中心を表す。



図 6:⁸⁴Kr+C 反応で観測された破砕片の減速効果 重い破砕片の減速効果は、Morrissey⁽¹²⁾(実線) や Kaufman⁽¹³⁾(点線)の系統性でほぼ説明でき る。



片や標的によらずほぼ一定の値となり、Goldhaber 模型を支持する結果となった。

ビーム方向に対して横方向の運動量(P_r)分布 は、 P_L 分布よりも広がることが実験結果から分 かっており、これは標的との衝突時の軌道の広 がりによるものとして理解されてきた⁽¹⁴⁾。重い 標的核の場合は、このエネルギー領域においても クーロン反発力によって軌道に偏向が生じること が予想できる。この予想を確認するために、Kr ビームを Al と Au 標的に照射して生成される破 砕片の角度分布を測定した。一次ビームから陽子 が 1 つはぎ取られて生成される⁸³Br の場合、図 8 のように Al 標的では前方のみにピークを持つ 分布となるのに対して、Au 標的では前方からず れた位置にピークを持つ分布となった。解析の結 果、このピークはおよそ 11 mrad に位置し、表面 が接するクーロン散乱として古典的に計算した散 乱角度 14 mrad に近い値となった。

このようにして測定した破砕片の運動量分布を *P_L*と*P_T*に関して積分すると、各破砕片の生成断 面積を得ることができる。生成断面積は破砕片の 核構造を反映するとともに、破砕片を二次ビーム として利用する際にビーム強度を見積もるために 必要な物理量である。



図 8:⁸⁴Kr から生成された⁸³Br の角度分布

4. まとめ

今までの研究で、多価重イオンビームの照射効 果に関して新たな知見が得られ、イオンビーム工 学をさらに発展させる可能性が見えてきた。多価 重イオンビームの応用を進めるためには、さらに 基礎データの蓄積が必要である。これと同時に、 より高強度の多価イオン源の開発が望まれる。

入射核破砕過程の生成物である破砕片の運動量 分布を通して、核反応過程に関する理解が深まっ た。これらの測定結果は、今まで測定例が少な かった核子あたり 300 MeV 付近のエネルギー領 域の核データとして広く利用されることが期待さ れる。

文献

- (1) 電気学会,"電子・イオンビーム工学",第7.3 章 pp.257-279, 1995.
- (2) S. Momota, Y. Nojiri, M. Saihara, et al., "First operation of ECR ion source at Kochi University of Technology" Rev. Sci. Instrum., vol.75, pp.1497–1498, 2004.
- (3) M. Kanazawa, A. Kitagawa, S. Kouda, et al., "Present status of secondary beam courses in HIMAC", Nucl. Phys. A, vol. 746, pp.393-396,

2004.

- (4) J.-P. Briand, G. Giardino, G. Borsoni, et al., "The interaction of slow highly charged ions on surfaces (invited)" Rev. Sci. Instr., vol.71, pp. 627-630, 2000.
- (5) S. Momota, K. Nishimura, Y. Nojiri, et al., "Analysis of Si crystal irradiated by highlycharged Ar ions using RBS-channeling technique" Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, vol.267, pp.1412–1414, 2009.
- (6) L.C. Feldman, J.W. Mayer, S.T. Picraux, "Materials analysis by ion channeling", 1982.
- (7) S. Satake, S. Momota, S. Yamashina, et al., "Surface deformation of Ar⁺ ion collision process via molecular dynamics simulation with comparison to experiment" J. Appl. Phys., vol.106, 044910, 2009.
- (8) 柏原正樹,大井一喜,豊永拓也,百田佐多 生,野尻洋一,2010年度精密工学会春季大 会学術講演会講演予稿集,O61 pp1079-1080, Mar. 2010年.
- (9)百田佐多生,柏原正樹,大井一喜,豊永拓也, 野尻洋一,2010年度精密工学会春季大会学

術講演会講演予稿集,O62 pp1081-1082, Mar. 2010年.

- (10) S. Momota, M. Kanazawa, A. Kitagawa, S. Sato, "Shift and width of momentum distribution of projectile-like fragments produced at 290MeV/u", 3rd Joint Meeting of the APS Division of Nuclear Physics and the Physical Society of Japan, BL.00009, Oct. 2009.
- (11) A. S. Goldhaber, "Statistical models of fragmentation processes", Phys. Lett. B53, pp. 306-308, 1974.
- (12) D.J. Morrissey, "Systematics of momentum distributions from reactions with relativistic ions", Phys. Rev. C. vol.39, pp. 460-470, 1989.
- (13) S.B. Kaufman, M.S. Freedman, D.J. Henderson, et al., "Momentum transfer to the target in peripheral collisions of relativistic heavy ions", Phys. Rev. C vol.26, pp. 2694-2697, 1982.
- (14) K. Van Bibber, D.L. Hendrie, D.K. Scott, et al., "Evidence for orbital dispersion in the fragmentation of 160 at 90 and 120 MeV/ Nucleon", Phys. Rev. Lett., vol.43, pp. 840-844, 1979.

Basic and applied research by using heavy ion beams

Sadao Momota*, Shin-ichi Satake**, Jun Taniguch**,

Mitsutaka Kanazawa^{***}, Atsushi Kitagawa^{***}, and Shinji Sato^{***}

(Received : April 24th, 2010)

*School of Environmental Science and Engineering, Kochi University of Technology 185 Miyano-kuchi, Tosayamada, Kami City, Kochi 782-8502

> **Department of Applied Electronics, Tokyo University of Science 2641 Yamazaki, Noda, Chiba, 278-8510 Japan

***National Institute of Radiological Sciences 4-9-1 Anagawa, Inage-ku, Chiba, Chiba, 263-8555 Japan

E-mail: *momota.sadao@kochi-tech.ac.jp

Abstract: Heavy ion (HI) beams are interesting research objects and also powerful tools in the wide range of fields. HI beams with low energies E < 1 MeV were applied to fabrication and modification of materials by using their irradiation effects. Owing to the development of the technique to produce ion beams, it becomes possible to apply highly-charged HI beams to industrial applications. We have performed investigations on irradiation effects and their industrial applications, by using the highly-charged HI beam facility built in KUT. In order to reveal the nature of microscopic objects, such as atom or nucleus, HI beams with high energies E > 100 MeV/u were applied. We have also performed experimental studies on reaction mechanism of projectile fragmentation process at HIMAC accelerator facility in NIRS.