

セシウムスパッターイオン源を利用した電子付着による C₆₀ 負イオン生成技術の開発

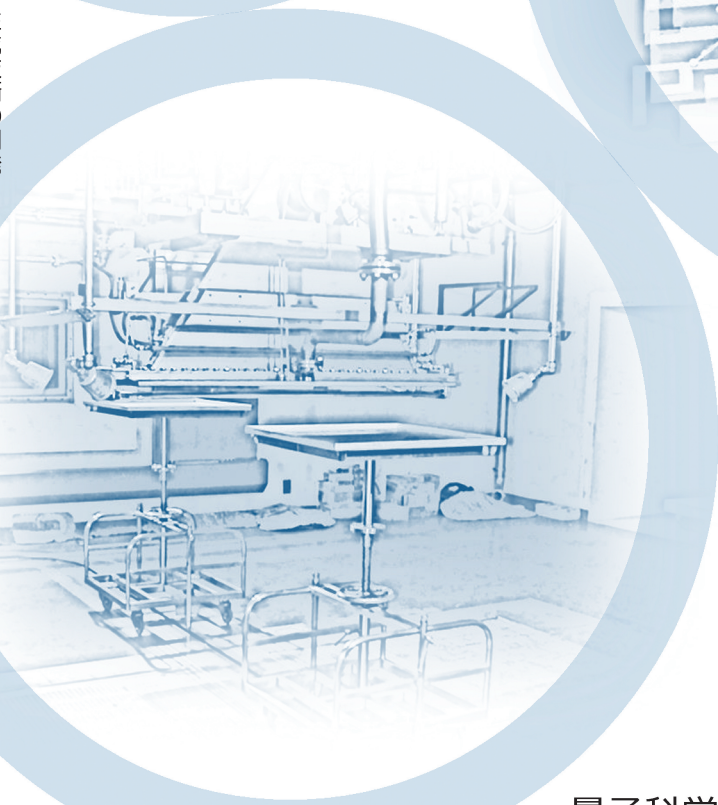
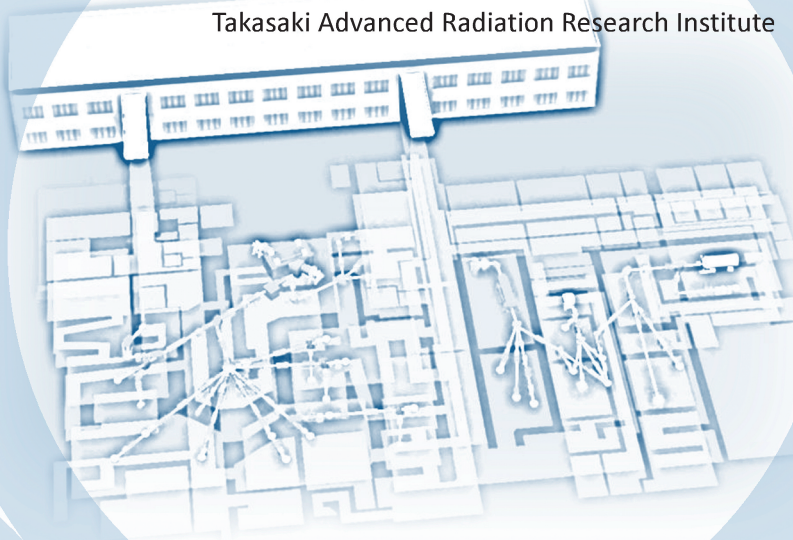
Development of Novel Technique of Negative C₆₀ Ion Production
by Electron Attachment using Cesium Sputter Ion Source

薄井 絢 千葉 敦也 山田 圭介

Aya USUI, Atsuya CHIBA, Keisuke YAMADA

高崎量子応用研究所

Takasaki Advanced Radiation Research Institute



量子科学技術研究開発機構

National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology

セシウムスパッターイオン源を利用した電子付着による C₆₀ 負イオン生成技術の開発

¹⁾日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター 安全管理部

²⁾量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学研究部門

高崎量子応用研究所 放射線高度利用施設部

薄井 絢¹⁾、千葉 敦也²⁾、山田 圭介²⁾

高崎量子応用研究所では、タンデム加速器を用いた高速 (MeV 級) クラスターイオンの照射効果に関する研究を加速するために、クラスターイオンの中でも特に大きな照射効果を持つ C₆₀ イオンビームの高強度化に取り組んだ。既存のセシウムスパッター型負イオン源 (SNICS II, 米国 National Electrostatics Corp. 製) を利用し、従来のスパッター方式に代わる新たな負イオン生成法として電子付着による負イオン化機構をこれに組み込んだ。その結果、従来の 1,000 倍の強度の C₆₀ 負イオンを 12 時間安定に生成することに成功した。

本報告書では、従来の生成方法の課題を示し、SNICS II の簡便な改造でそれを解決する電子付着方式について詳説する。

Development of Novel Technique of Negative C₆₀ Ion Production by Electron
Attachment using Cesium Sputter Ion Source

Aya USUI¹⁾, Atsuya CHIBA²⁾ and Keisuke YAMADA²⁾,

¹⁾ Health and Safety Department

Oarai Research and Development Center

Japan Atomic Energy Agency

Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

²⁾ Department of Advanced Radiation Technology

Takasaki Advanced Radiation Research Institute

Quantum Beam Science Research Directorate

Quantum and Radiological Science and Technology

Watanuki-machi, Takasaki-shi, Gunma-ken

In the TIARA (Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radiation Application), in order to propel the studies on the swift cluster ions, a novel technique was developed to increase the beam intensity of the fullerene ions which would have a considerably larger irradiation effect than any cluster ions. As a new method of negative ion production, the ionization mechanism by electron attachment was introduced as an alternative to the traditional method with the cesium sputtering to the existing cesium sputter type ion source (SNICS II, National Electrostatics Corp.). In consequence, the intensity of the negative C₆₀ ion beam produced using an existing ion source with a novel technique was increased thousand times as high as those using the previous one for 12 hour operation.

In this report, we describe the problems in the traditional ionization method and explain the production technique of the negative C₆₀ ions ionized via electron attachment process, which solves that only by the minor changes in SNICS II.

Keywords : Negative C₆₀ Ions, Electron Attachment, Cesium Sputter Ion Source

目 次

1. はじめに.....	1
2. セシウムスパッター方式による C_{60} 負イオンの生成.....	3
2.1 Reflected Type セシウムスパッター型負イオン源 (Hiconex 834)	3
2.2 Inverted Type セシウムスパッター型負イオン源 (SNICS II)	6
2.3 SNICS II による C_{60} 負イオン生成.....	8
3. C_{60} 負イオンビームの高強度化.....	10
3.1 C_{60} の特性.....	10
3.2 SNICS II を用いた電子付着方式による C_{60} 負イオンの生成	12
3.3 C_{60} 負イオン生成量	15
3.4 ビーム安定化システム	15
3.5 C_{60} 負イオンの生成効率に関する考察.....	18
4. まとめ	20
謝辞.....	20
参考文献	20

Contents

1. Introduction	1
2. Production of Negative C_{60} Ion by Cesium Sputter Method	3
2.1 Reflected Type Cesium Sputter Negative Ion Source (Hiconex 834)	3
2.2 Inverted Type Cesium Sputter Negative Ion Source (SNICS II)	6
2.3 Production of Negative C_{60} Ion using SNICS II	8
3. Increment in Intensity of Negative C_{60} Ion Beam	10
3.1 Characteristics of C_{60}	10
3.2 Production of Negative C_{60} Ion by Electron Attachment Method using SNICS II	12
3.3 Production of Negative C_{60} Ion	15
3.4 Beam Stabilization System	15
3.5 Consideration in Production Efficiency of Negative C_{60} Ion	18
4. Conclusion	20
Acknowledgment	20
References	20

1. はじめに

葡萄の房のように同種又は異種の原子同士が複数個結合した状態をクラスターと呼ぶ。クラスター構成原子数（クラスターサイズ）が数千～数万に及ぶ巨大クラスターを数 keV のエネルギーで加速する、いわゆる低速クラスターイオンビームに関する研究は、ラテラルスパッタリングなどの低速クラスターイオン特有の照射効果を利用した光学素子の作製や表面研磨等の産業応用へと発展した¹⁾。加速器技術の進歩に伴い 2 個から数十個程度の小規模なクラスターを MeV エネルギーで加速することが可能になると、低速クラスターイオンビームとも、単原子イオンビームとも異なる高速（MeV 級）クラスターイオンビーム特有の照射効果が様々な物理現象において観測された²⁻⁷⁾。国内では平成 10 年に高崎量子応用研究所のイオン照射研究施設（TIARA）のタンデム加速器（9SDH-2 National Electrostatics Corp. 製）を用いて最初的高速クラスターイオンの照射実験が行われた⁸⁾。以来、大学や研究機関と連携して多角的に研究が進められ、現在 TIARA は高速クラスターイオン照射研究において国内の中核的施設となっている⁹⁻¹⁵⁾。高速クラスターイオンと固体ターゲットとの衝突では、クラスターを構成する複数の高エネルギーイオンがターゲット表面近傍の極めて微小な空間（数 Å オーダー）において集団的にターゲット原子と相互作用する。クラスター構成イオンとの衝突で励起状態となったターゲット原子は、緩和する前に次の構成イオンと衝突し、一方で、構成イオンはターゲット原子による高密度励起場を集団で移動する。こうした、単原子イオンビームや低速クラスターイオンビームの照射に比べ遥かに激しく複雑な相互作用の結果、高速クラスターイオン特有の照射効果が生じる。例えば、 n 個で構成されたクラスターを照射した場合に、ターゲットから放出される 2 次イオンの収量 Y_c と同速度の単原子イオンを照射した場合の収量 Y_a を比較すると、1 原子あたりの放出量 $[Y_c/(nY_a)]$ はクラスターを照射した場合に増大する。この非線形な照射効果は、阻止能や 2 次粒子放出、構成イオンの平均電荷、イオントラック形成などで観測され、クラスターのサイズと共に大きくなる傾向がある²⁾。そのため、現状 MeV エネルギーに加速できる最大のサイズのクラスターであるフラーレン（C₆₀、C₇₀ など）は極めて大きなクラスター効果が得られると考えられる。イオン衝突シミュレーションコード SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)¹⁶⁾ で固体衝突におけるエネルギー付与を見積もると、10MeV の C₆₀ のエネルギー付与（炭素単体のエネルギー付与の 60 倍と仮定する）は 1GeV のウランのそれに等しいことを示す結果が得られる。実際の C₆₀ 照射によるエネルギー付与はクラスター特有の照射効果を伴うため単原子のウランとの単純な比較はできないが、タンデム加速器などの比較的小規模な加速器でも、固体の極表面に与えるエネルギーは大型加速器のそれに匹敵する。このように特異な照射効果を持つ C₆₀ と普及率の高いタンデム加速器を組み合わせることで、超高密度励起による新機能性材料の開発や高い 2 次イオン収率による高感度な生体高分子イメージング分析技術の開発¹⁴⁾、あるいは遺伝子破壊にクラスター効果を利用した新規ゲノム創成など、高速 C₆₀ イオンは様々な分野において新たな可能性を

拓くものと期待される。しかし、高エネルギービームを得る上で有利なタンデム加速器で用いられるイオン源での C_{60} 負イオンの生成量は極めて少ない。更に、荷電変換の際、ストリッパガスとの衝突により多くの C_{60} が解離するため、微少電流計では計測できないほど微弱なビーム強度となる。そのため、ビーム輸送が極めて困難であり、また、高いフルエンスを必要とする照射実験を行うことは不可能な状況にある。これらの理由から C_{60} イオンビームの照射が可能な施設は世界的にも少ないのが現状である。

TIARA のタンデム加速器では平成 23 年度から C_{60} イオンビームの照射を開始した。並行してビームの高強度化に向けた技術開発に取り組み、ストリッパガスを窒素 (N_2) からクラスターイオンの解離断面積の小さいヘリウムガス (He) に変えることで荷電変換効率を約 2 倍に向上させた¹⁷⁾。しかしながら、イオン源での C_{60} 負イオンの生成量が少なく、ターゲット上での C_{60} イオンビームは数万 cps 程度であることから、通常の単原子イオンビームの 3 倍以上の輸送調整時間を要する上、照射条件が限られるため研究利用も限定的である。高速フラーレンイオンに関する研究の発展には、イオン源での C_{60} 負イオンの生成量の増強が不可欠である。設置のスペースや年間運転計画に対する稼働率の維持等を考慮すると C_{60} 負イオン専用の新たなイオン源の導入や既存イオン源との置き換えは難しい。そこで、通常の単原子イオン生成能力を損なわず、 C_{60} 負イオンの生成が可能なイオン源の開発が急務であった。

本報告では、タンデム加速器を用いた高速 C_{60} イオンビームに関する研究の発展に資するべく、次章以降にこれまでの C_{60} 負イオンの生成法について記述したのち、新たに開発した高強度 C_{60} 負イオンの生成法について解説した。

2. セシウムスパッター方式による C_{60} 負イオンの生成

タンデム加速器では、イオン源で生成した負イオンを一度加速した後、正イオンに荷電変換して再度加速する。タンデム加速器で広く用いられるセシウムスパッター型負イオン源は、セシウム正イオンで試料をスパッターすることで試料原子を負イオン化するもので、セシウム正イオンの加速方向で **Reflected type** と **Inverted type** に分類される。セシウム正イオンがイオン源出口方向に加速されたのち電場で反転して試料をスパッターするタイプを **Reflected type**、一方、セシウム正イオンがイオン源出口に対して逆向きに加速され試料をスパッターするタイプを **Inverted type** と呼ぶ。

2.1 Reflected Type セシウムスパッター型負イオン源 (Hiconex 834)

Reflected type による負イオン生成原理の概略を図 1 に、試料が充填されているスパッターカソード部分を図 2 に示す。蒸気圧が高いセシウムはオーブンで 150°C 程度に温められると容易に蒸気となる。セシウムは電離電圧が低いいため、 $1,000^{\circ}\text{C}$ 程度に加熱され赤熱状態にあるアイオナイザーと接触すると表面電離でほぼ 100% セシウム正イオンになる。セシウム正イオンは引出電極（セシウム用）で引き出されたのち、アインツェルレンズで収束され、セシウム正イオンビームとなる。負の電圧を印加したモリブデンシールドに設けられた穴を通過すると電場によりこの向きが反転し、スパッターカソードをスパッターする。カソードからはじき出された原子あるいは分子の一部が負イオンとなり、引出電極（負イオン用）の電場によりビームとして引き出される。特に電子親和力の高い原子（分子）ほど負イオンになりやすく、炭素イオンでは数十 μA のビーム強度を長時間安定に生成できる。しかし、 C_{60} は、スパッターの衝撃で多くが解離するため、生成される C_{60} 負イオンのビーム強度は極めて低い。更にスパッターカソード表面の解離したフラグメントの割合の増加に伴いビーム強度は急激に減少する。

C_{60} イオンビームの加速に初めて成功したフランスのオルセー核物理研究所の MP タンデム加速器では、負イオン源に **Reflected type** の Hiconex 834 を用いた。彼らは、スパッターカソード表面のフラグメントの割合増加による急激なビーム強度の低下を抑制するために、セシウム正イオンビームを反転させずにスパッターカソードを直接スパッターする独自の方式 (**Direct type**) を考案した¹⁸⁾。 **Direct type** による負イオン生成原理の概略を図 3 に、カソード部分を図 4 に示す。また、 C_{60} 負イオンビーム強度の時間変化を図 5 に示す。 C_{60} を円錐形に圧縮固化した表面積の大きいスパッターカソードを、セシウム正イオンビームを走査してスパッターすることで約 50pA の C_{60} 負イオンを 48 時間持続させ、世界最高レベルのビーム強度及び連続運転時間を達成した。

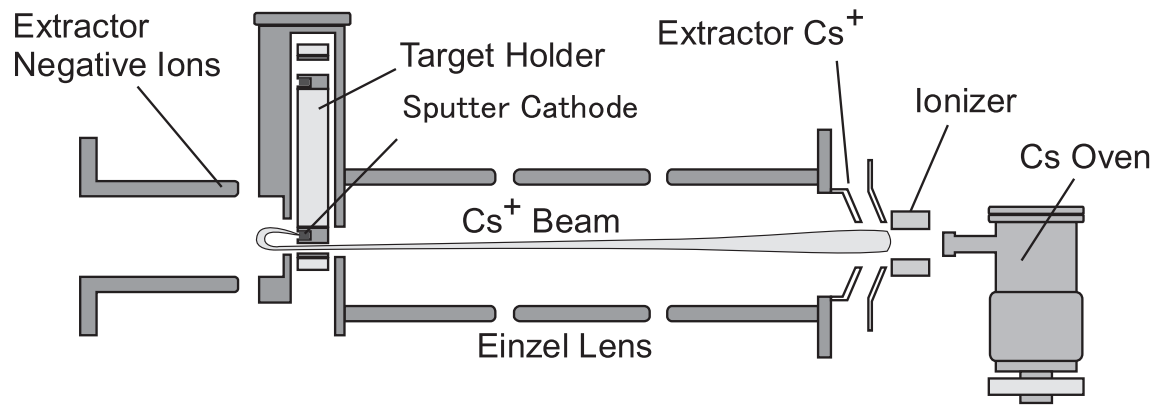


図 1. Reflected type による負イオン生成の概略

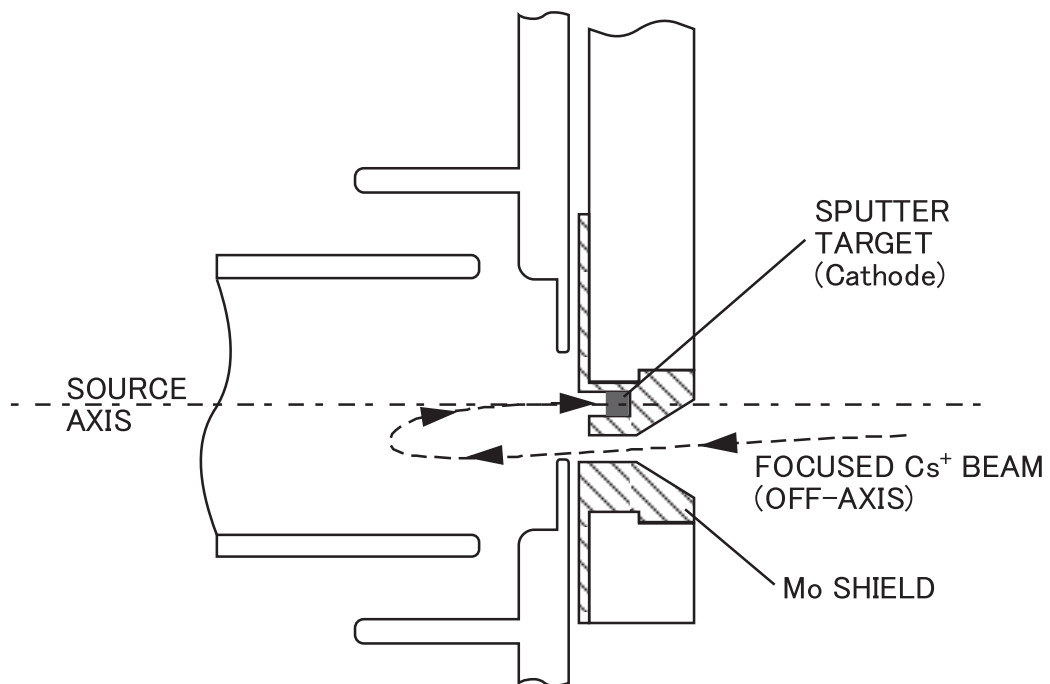


図 2. Reflected type のカソード部分

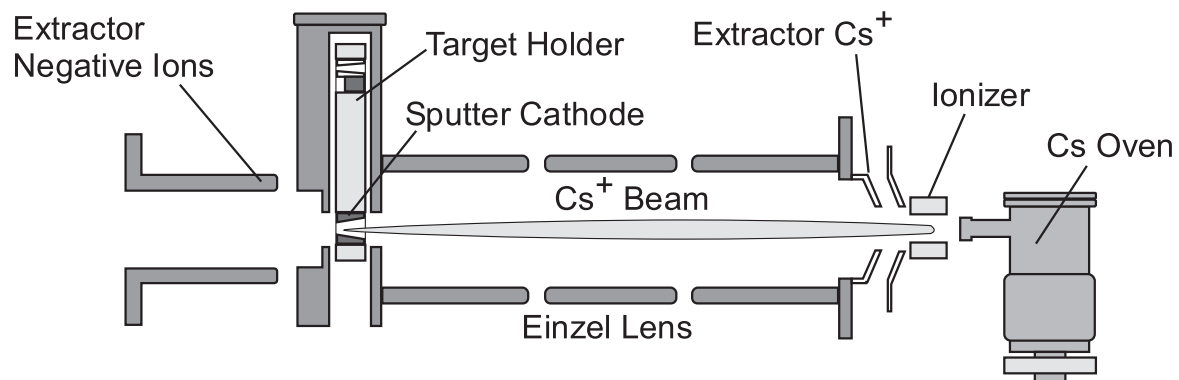


図 3. Direct type による負イオン生成の概略

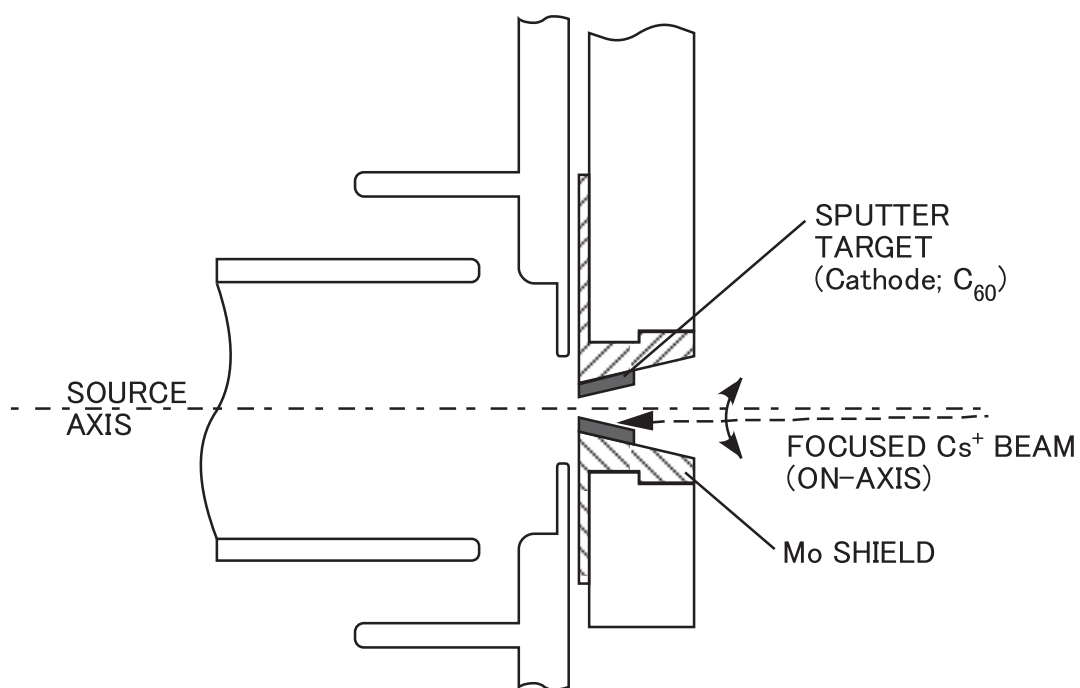


図 4. Direct type のカソード部分

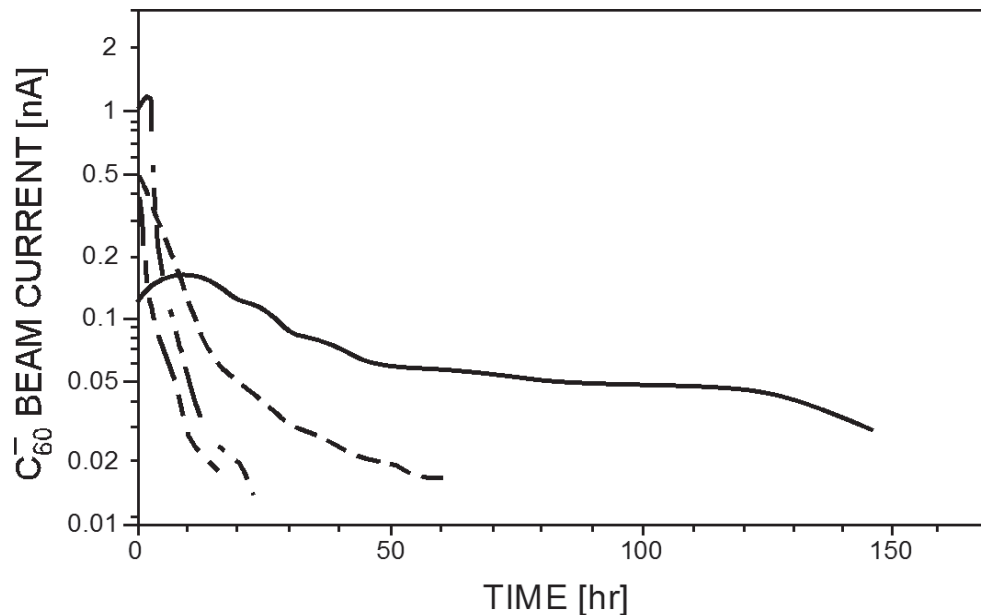


図 5. C₆₀ 負イオンビーム強度の時間変化 ¹⁸⁾

実線 : Directed Type、破線 : Reflected Type

2.2 Inverted Type セシウムスパッター型負イオン源 (SNICS II)

TIARA のタンデム加速器ではヘリウムイオン専用の RF 荷電変換型負イオン源 (Alphatross) 1 台とプロトン及び重イオン用のセシウムスパッター型負イオン源 (Source of Negative Ions by Cesium Sputtering II; SNICS II) 2 台を設置している。年間に行われる実験のうち 9 割以上で使用される SNICS II を 2 台設置することで、一方が故障しても運転に支障がなく、実験計画に対する高い稼働率を維持している。また、1 回 (1 日) の実験において 2 種類までのイオン種の照射が可能である。SNICS II による負イオン生成原理の概略を図 6 に示す。円錐状の金属プレート (タンタル) を重ねた内部に太さ 1mm φ の電熱線 (タンタル) をらせん状に収めた構造のアイオナイザーは、電熱線 (最大電流 30A) の輻射熱により 1,000°C 程度まで加熱され赤熱状態になる。オーブンで蒸気となったセシウムは、セシウムラインを通してアイオナイザーチェンバー内に送り込まれる。負イオン化する目的の試料は、銅あるいはアルミニウムの円筒形のカソードコーンに圧縮固化され、カソードロッドを用いてアイオナイザーに対面する位置に装填される。この目的試料 (スパッターカソード) に -5kV 程度の電圧を印加すると、セシウム正イオンはアイオナイザーからスパッターカソードへ向かって加速され、その表面をスパッターする。このときスパッターカソードからはじき出された原子あるいは分子の一部が負イオンとなり、通常 10kV 印加した引出電極によりイオン源から引き出される。比較的電子親和力が高い炭素や酸素等では、10~100μA の負イオンビーム強度が得られる。また、スパッターカソードの表面に

アイオナイザーチェンバー内の中性のセシウムが付着すると、電気陰性度の低いセシウムはカソード表面の仕事関数を実効的に下げ、負イオン生成効率を高める働きをする^{19,20)}。セシウムスパッター型負イオン源はセシウムの3つの特徴的な性質（蒸気圧が高い、電離電圧が低い、電気陰性度が小さい）が重要な役割を担っている。アイオナイザーから放出される熱電子やスパッターによる2次電子が負イオンと同様にビームとなりイオン源から引き出されることを抑制するためにイオン源内には永久磁石による磁場が設けられている。

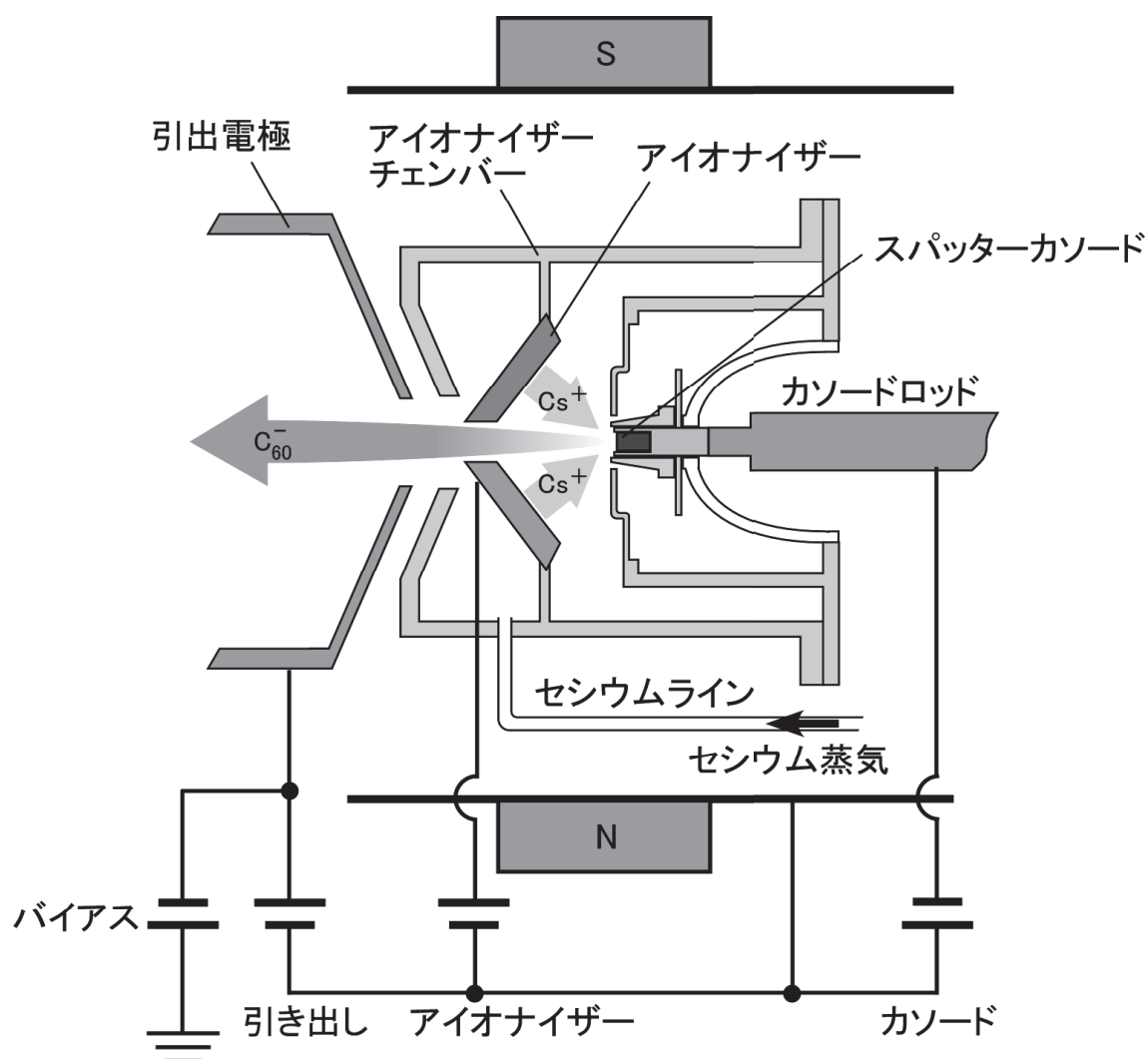


図 6. SNICS II による負イオン生成原理の概略

2.3 SNICS II による C_{60} 負イオン生成

セシウムスパッターによる C_{60} 負イオン生成は単原子イオンの生成と基本的に同じである。アイオナイザーとの接触で電離したセシウム正イオンが -5kV 程度に印加された C_{60} の固化体（スパッターカソード）の表面をスパッターし、 C_{60} 負イオンを生成する。 C_{60} スパッターカソードの製作法を図 7 に示す。単原子イオンの場合は、カソードコーンの中に粉末試料を入れ、専用のプレス機で圧縮固化してスパッターカソードを製作する。プレス圧力を上げ過ぎるとカソードコーンの形状が変形するため、通常は $15\text{kg}/\text{cm}^2$ 程度で圧縮する。 C_{60} の場合、Reflected type と同様に、セシウムのスパッターによるスパッターカソード表面の解離した C_{60} のフラグメントの割合の増加に伴い急激にビームが減少するため、ビームの強度を長く維持するためには面密度の高い C_{60} スパッターカソードが望ましい。そこで、 C_{60} 粉末を通常よりも高い圧力（ $2\text{t}/\text{cm}^2$ ）で圧縮固化したペレットをカソードコーンに詰めて C_{60} スパッターカソードを製作する。生成した負イオンビームを 30 度のマグネットで分析したマススペクトルを図 8 に示す。アイオナイザーに 27A （約 900°C ）、引出電極に 10kV 、カソードに -3.5kV 、バイアスに -0.5kV を印加した。 C_{60} 負イオン（ $m/z=720$ ）のビーム強度は 5pA 程度であり、全体の 1% に満たない。残りの 99% は C_{60} から解離したフラグメントであり、セシウム正イオンのスパッターによる衝撃でほとんどの C_{60} が解離していることが分かる。 C_{60} 負イオンビーム強度の時間変化を図 9 に示す。イオン源の立ち上げから 20 分程度で最大値（ 100pA 程度）に達し、その 20 分後には 10 分の 1 程度まで急激に減少した。

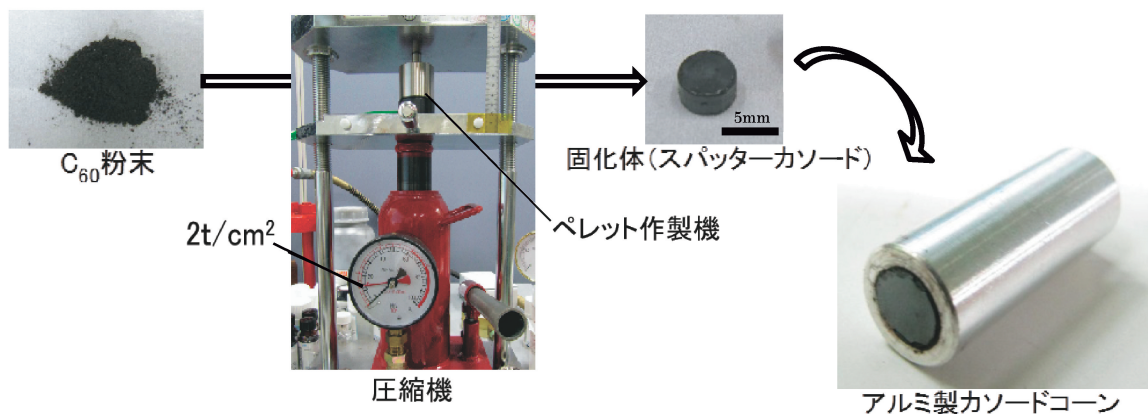


図 7. セシウムスパッター方式（SNICS II）で用いる C_{60} カソードの製作法

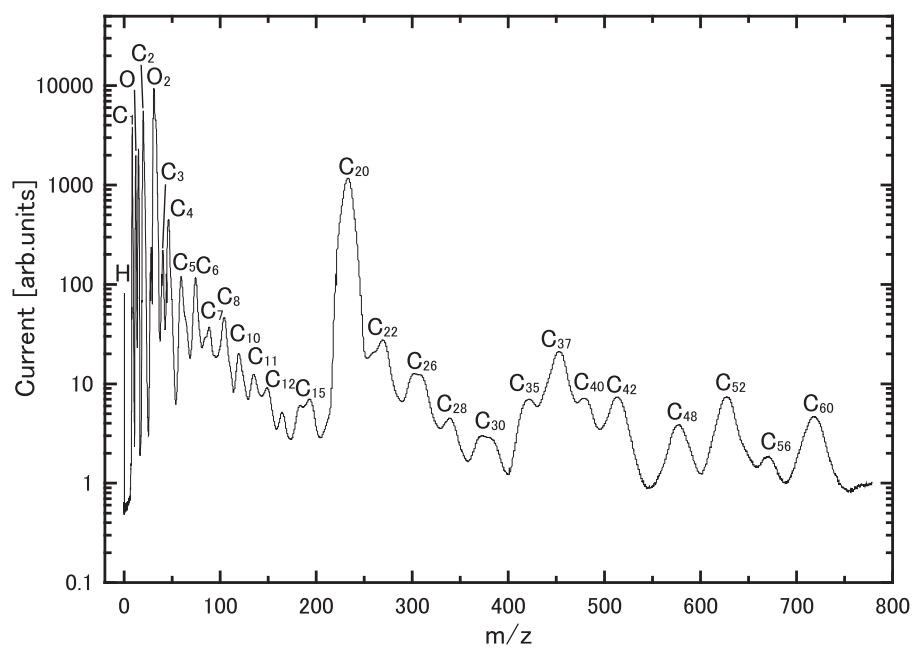


図 8. セシウムスパッター方式 (SNICS II) による負イオンビームのマススペクトル
(スパッターカソード: C₆₀ 固化体)

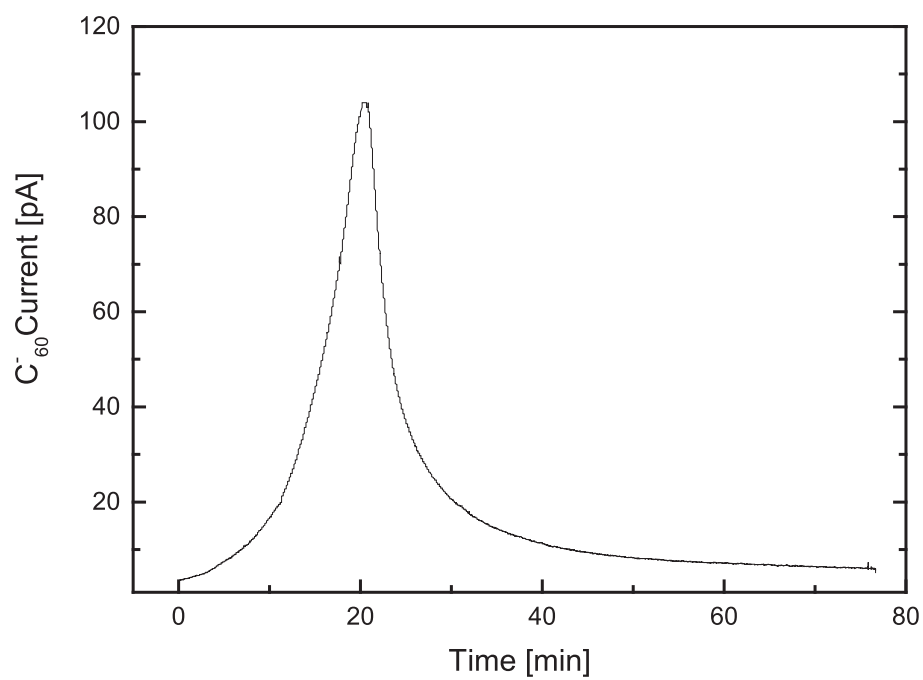


図 9. C₆₀ 負イオンビーム強度の時間変化

3. C₆₀ 負イオンビームの高強度化

3.1 C₆₀ の特性

C₆₀ の熱重量分析による温度特性を図 10 に示す²¹⁾。酸素雰囲気では、C₆₀ は酸化したのち 330℃程度で分解が始まり CO と CO₂ となって蒸発する。不活性雰囲気では、300℃程度で昇華が始まり、650℃程度で昇華速度が最大となる。また、900℃程度まで分解せずに安定に存在する²²⁾。

SNICS II において負イオンの生成量が多い元素及び C₆₀ の電子親和力を表 1 に示す²³⁾。C₆₀ は C (炭素)、O (酸素)、Si (シリコン) の約 2 倍の電子親和力を有するので、負イオンになりやすいと言える。

電子のエネルギーに対する電子付着による C₆₀ 及び C₇₀ 負イオンの生成量を図 11 に示す²⁴⁾。C₆₀ は 5eV 程度の電子に対して大きな付着断面積をもち、十数 eV 程度までの電子を付着する。これらの特性より、5eV 程度のエネルギーの電子を C₆₀ に衝突させることで、効率的な C₆₀ 負イオンの生成が可能であると考えられる。

SNICS II の 1,000℃程度に加熱されたアイオナイザーは赤熱状態にあり、エネルギーの低い熱電子が放出される。また、真空中は不活性ガス中と同様な温度特性を示すと考えられる。したがって、これらのことから、C₆₀ を小型のオープンで熱解離することなく昇華し、アイオナイザーチャンバー内に送り込むことで電子付着による C₆₀ 負イオンの生成が期待できると考えた。

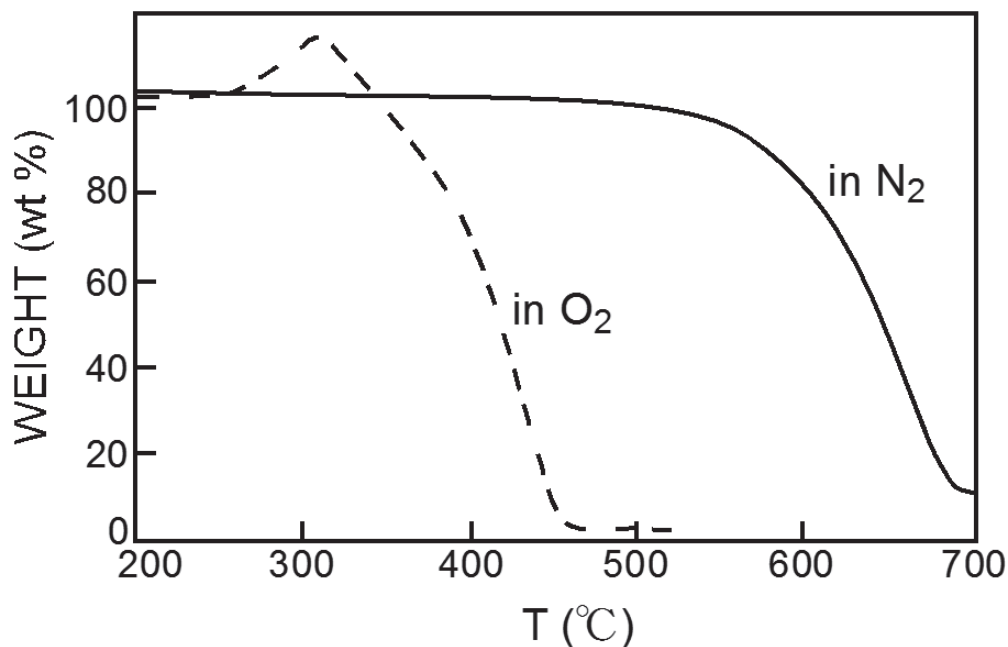


図 10. C₆₀ の熱重量分析による温度特性²¹⁾

表 1. C₆₀ とその他元素の電子親和力

イオン種	電子親和力[eV]
C	1.26
O	1.46
Si	1.39
C ₆₀	2.65

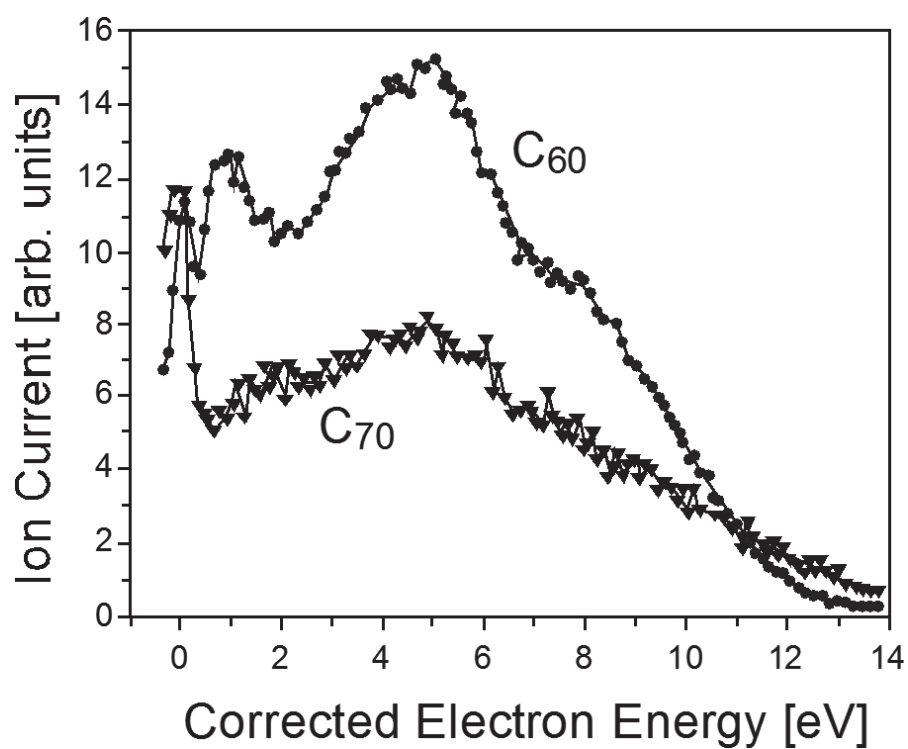


図 11. 電子のエネルギーに対する電子付着による負イオン生成量 ²⁴⁾

3.2 SNICSⅡを用いた電子付着方式による C₆₀ 負イオンの生成

本方式では、オープンロッドで昇華した C₆₀ にアイオナイザーから放出される熱電子を付着させ C₆₀ 負イオンを生成する。電子付着方式による負イオン生成原理の概略を図 12 に示す。

(1) オープンロッド

昇華した C₆₀ をアイオナイザーチェンバーに効率よく送り込むために、セシウムスパッター方式（単原子イオンの生成）で使用するカソードロッドと同じ形状で、700℃程度まで加熱できるオープンロッドを備えたロッド（オープンロッド）を製作した。カソードロッドとオープンロッドの写真を図 13 に、オープンロッドの概略を図 14 に示す。オープンロッドはアスペクト比 20 のタングステン管（内径 2mm）、C₆₀ 粉末を 200mg まで充填可能なカーボン製のるつぼ、セラミックス（六窒化ホウ素）に太さ 0.35mm φ の電熱線（タンタル）が巻かれたオープンより構成される。オープンロッド内部の熱電対でるつぼの温度（オープン温度）をモニタし、電熱線に印加する電流を調整して C₆₀ の昇華量を制御する。アスペクト比の大きいタングステン管から放出された C₆₀ はビーム軸方向に指向性を持って移動する。このとき、アイオナイザーの熱で高温になっているアイオナイザーチェンバーの中心付近を移動する C₆₀ の温度は 400～500℃程度であるため、熱解離はほとんどない。

(2) 熱電子

セシウムスパッター方式で使用したアイオナイザーA（図 15 左）と未使用のアイオナイザーB（図 15 右）の熱電子のエミッションの比較を図 16 に、エミッションの測定系を図 17 にそれぞれ示す。アイオナイザーA は 700℃程度で熱電子の放出が始まり、830℃からエミッションは急激に増加して 900℃で約 17μA に達する。一方、アイオナイザーB では 850℃までほとんど熱電子は放出されず、900℃でアイオナイザーA の 12 分の 1（約 1.4μA）のエミッションであった。これは、スパッター方式で使用したのち大気に取り出したことで、アイオナイザーA の表面全体に付着したセシウムや多種の試料が酸化し、これら酸化物が電子放出層となり、アイオナイザーからのエミッションを増加させたためだと考えられる。本方式の場合、アイオナイザーA を用いることでより多くの C₆₀ 負イオンを生成できる。

(3) 永久磁石

SNICSⅡには、アイオナイザーチェンバー内で発生した電子が負イオンと共に引き出されることを抑制するための磁場を形成する一対の永久磁石が標準で装備されており、磁石を外すとビーム強度が減少することから、電子付着方式ではこの磁場が熱電子の飛程を伸ばして電子付着の確率を高める役割をされると考えられる。

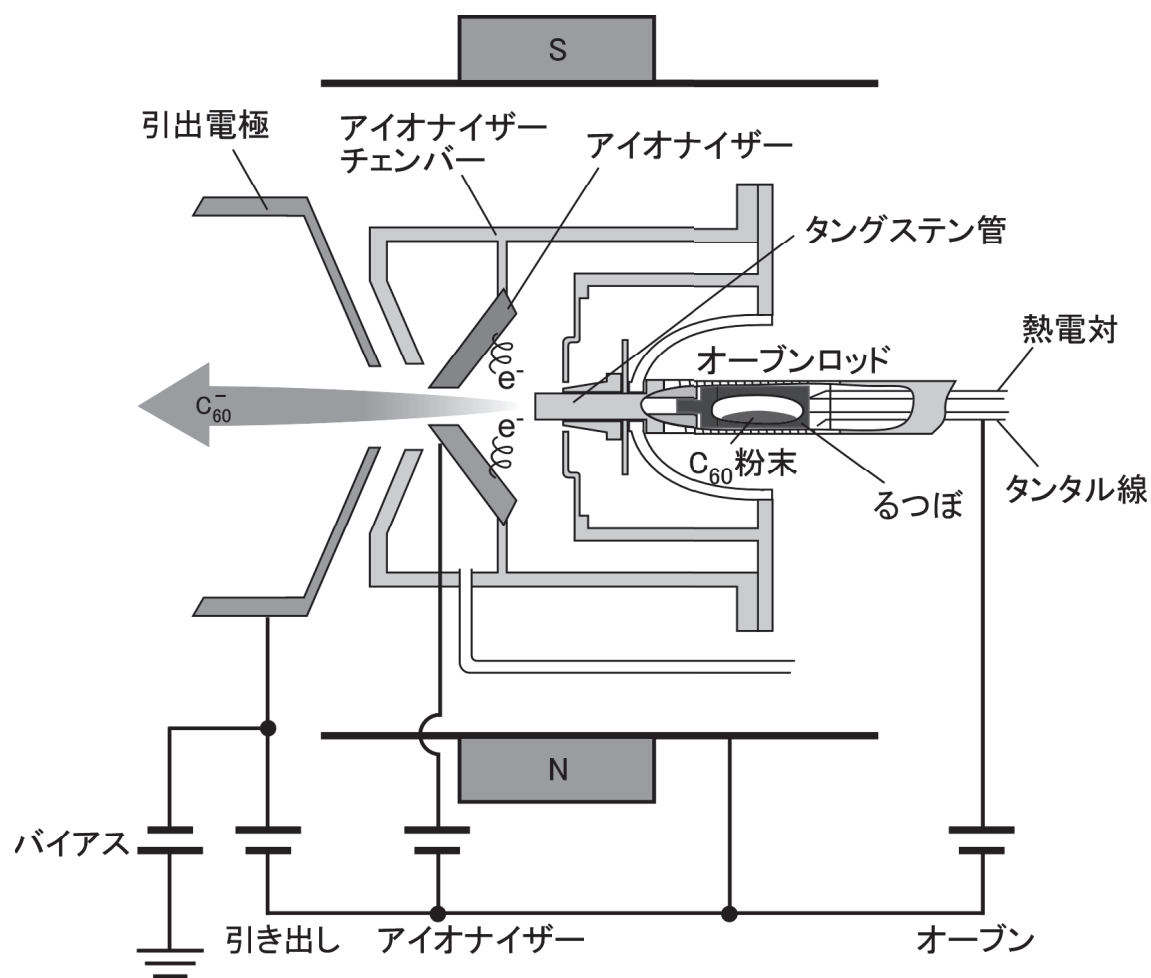


図 12. 電子付着方式による負イオン生成原理の概略



図 13. オープンロッド（上）とカソードロッド（下）

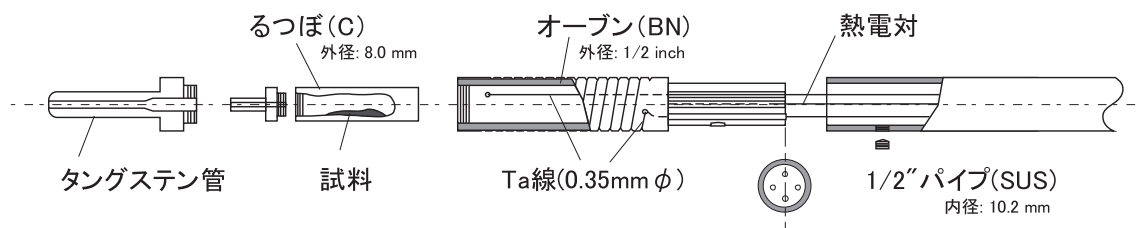


図 14. オープンロッドの概略図

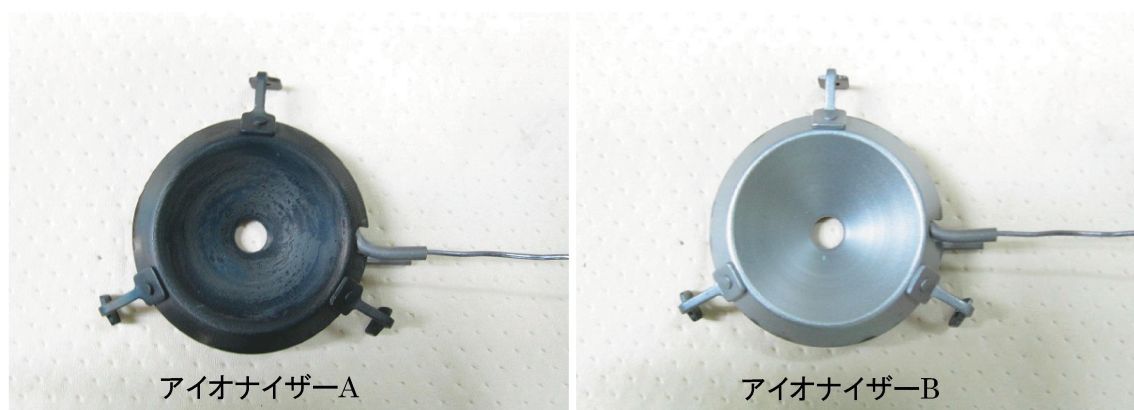


図 15. アイオナイザー（セシウム雰囲気中での使用有り（左）未使用（右））

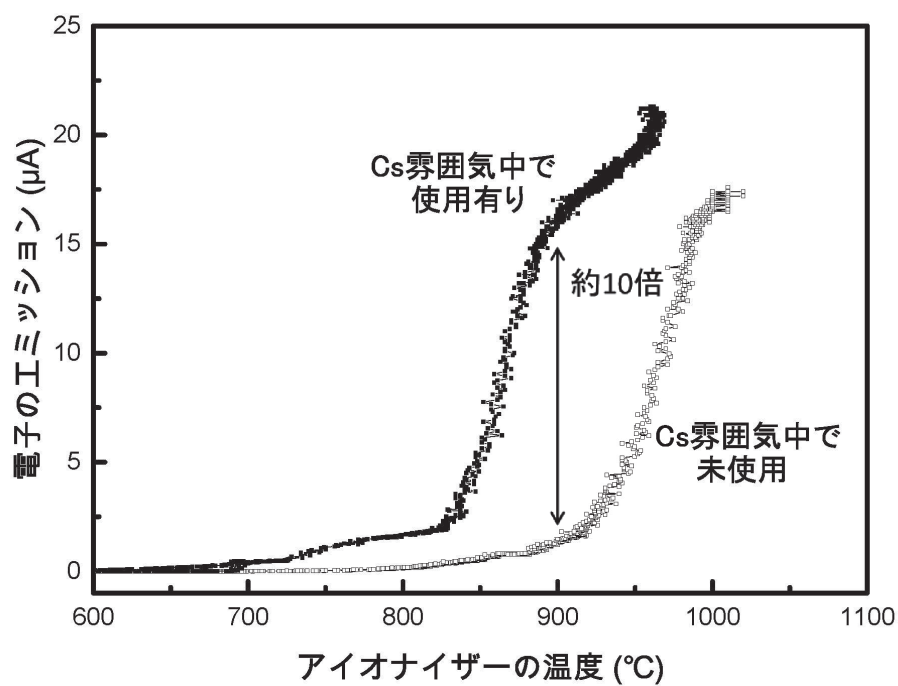


図 16. アイオナイザーからの熱電子のエミッション

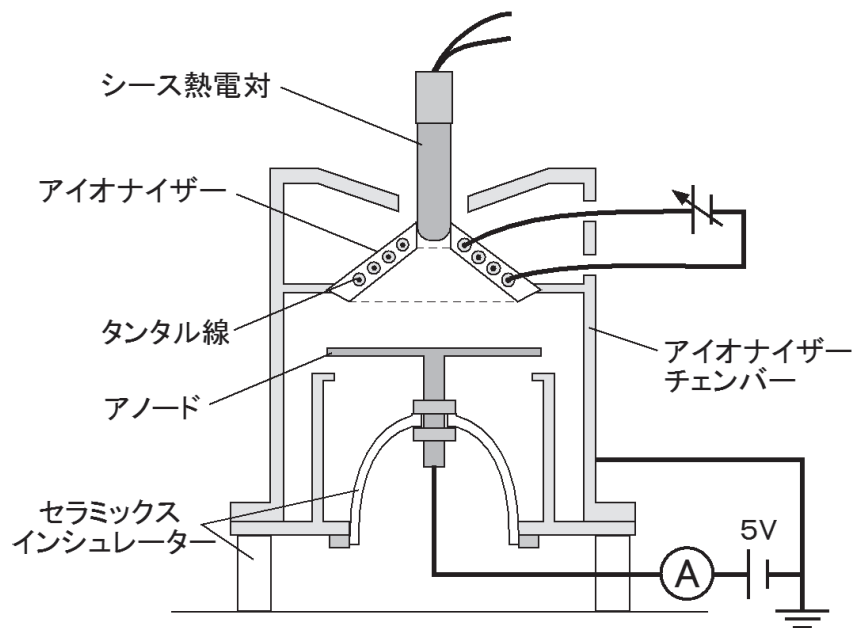


図 17. エミッションの測定系

3.3 C₆₀ 負イオン生成量

電子付着方式により生成した負イオンビームのマススペクトルを図 18 に示す。アウトガスの O₂ と C₆₀ から 2 原子脱離した C₂ がわずかに確認できるが、99%以上が C₆₀ 負イオンであり、ほとんどの C₆₀ は解離することなく負イオン化される。C₆₀ 負イオンビーム強度とオープン温度の時間変化を図 19 に示す。イオン源の立ち上げから 30 分程度で従来の生成法に比べて 1,000 倍以上である 30nA の C₆₀ 負イオンビームを 1 日の運転予定時間（10 時間）を上回る約 12 時間生成できることを確認した。このとき、オープン温度が一定でもビーム強度が徐々に減少する。これは、C₆₀ の昇華量がオープンロッドのるつぽから放出される C₆₀ の量よりも多いため、るつぽ内の圧力が上昇して C₆₀ の昇華量が減少したと考えられる。C₆₀ の昇華量の減少に伴って、るつぽ内の圧力も減少するが、平衡に達するまでには時間がかかる。その間もビーム強度が減少するため、ビーム強度を維持するためにはオープン温度を定期的に上げる必要がある。

3.4 ビーム安定化システム

イオン源運転の効率化を図るため、オープン温度を自動制御してビーム強度を一定に保つビーム安定化システムを開発した。システムの構成及び制御画面を図 20 に示す。ビーム強度の増減は、タンデム加速器のビームラインに設置されたビームプロファイルモニター（Beam Profile Monitor ; BPM）のコレクト信号の積分値で判断する。その値をもとにオープンに印加する電流値を制御してオープンの温度を増減し、C₆₀ の昇華量を一定に保つ。このシステムを用いて C₆₀ 負イオンビーム強度の時間変化を測定した。結果を図 21 に示す。

20nA 程度の C_{60} 負イオンビームを約 40 時間生成できることを確認した。これは、世界最高レベルのビーム強度（図 5 実線）の約 400 倍である。

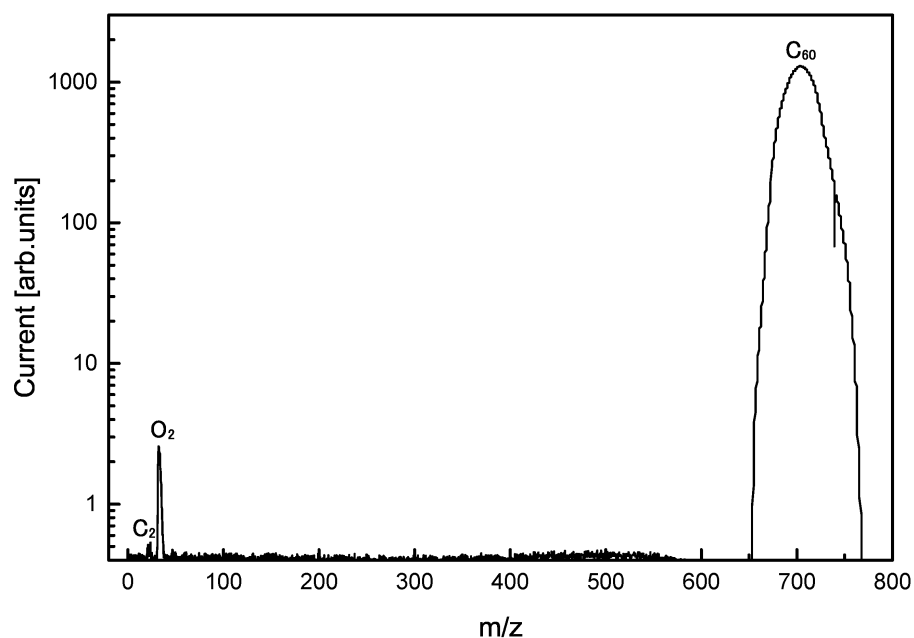


図 18. 電子付着方式による C_{60} 負イオンビームのマスペクトル

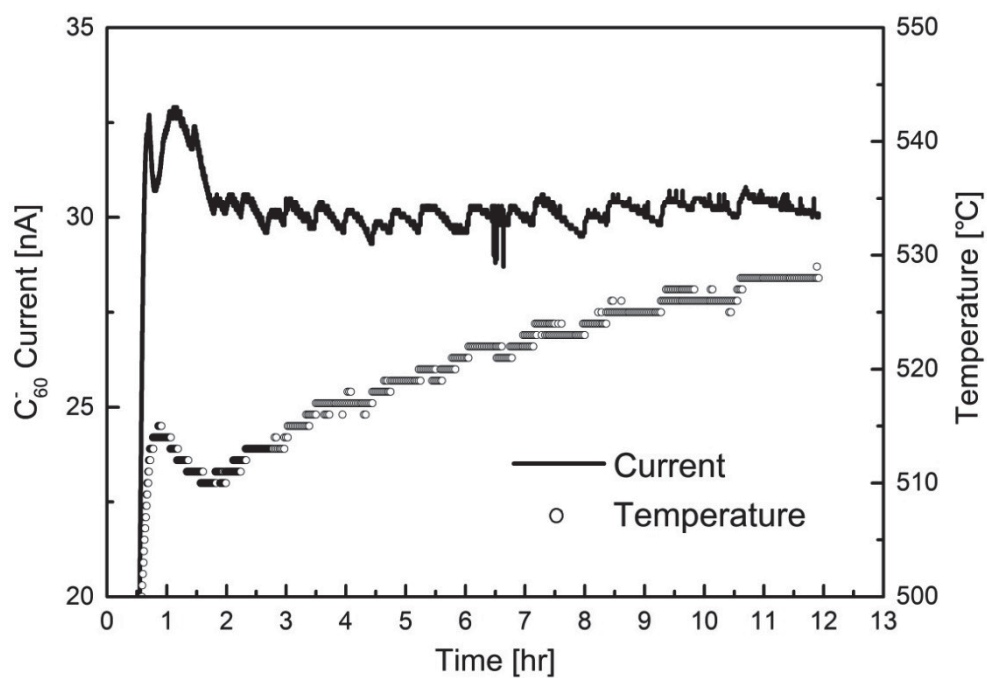


図 19. C_{60} 負イオンビーム強度とオーブン温度の時間変化

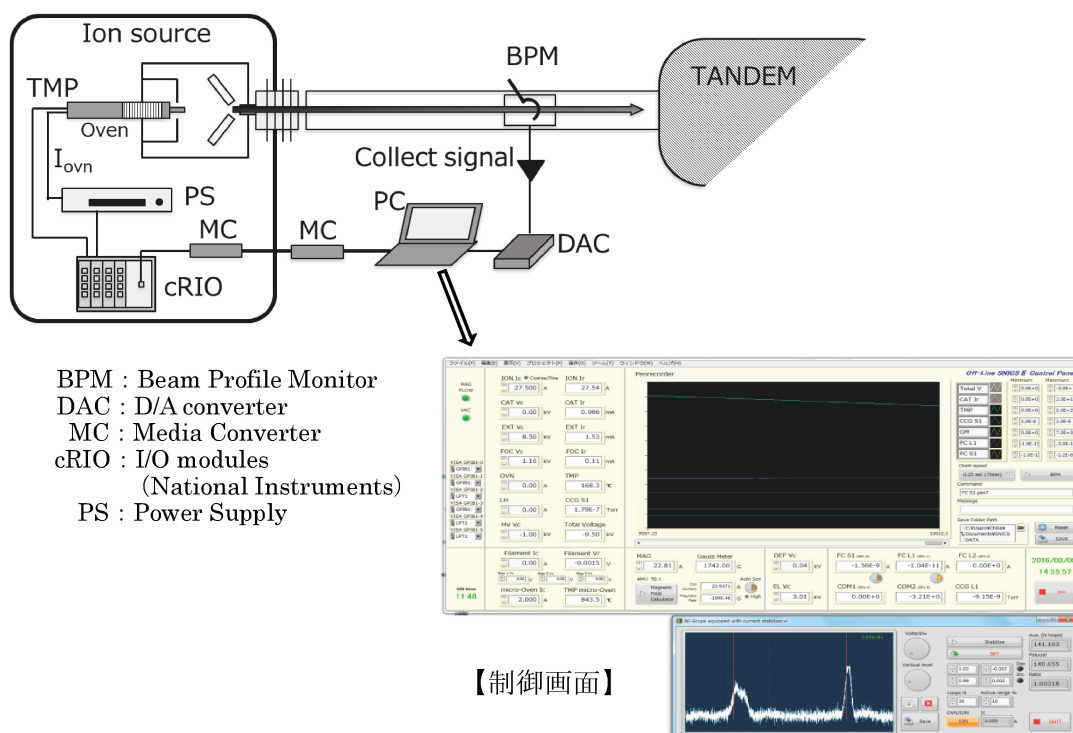


図 20. イオンビーム安定化システムの構成及び制御画面

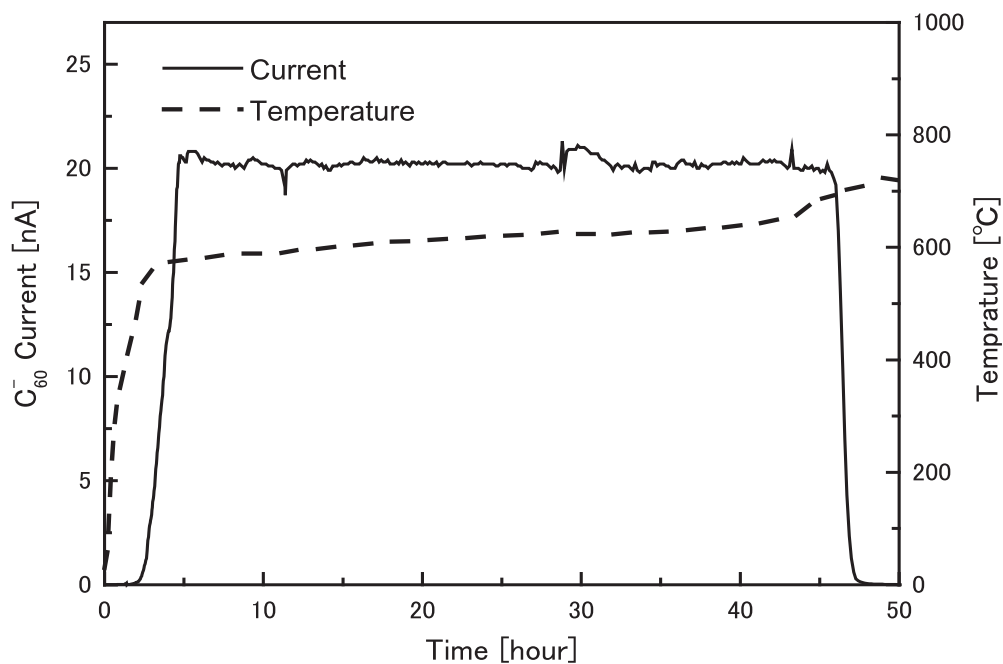


図 21. ビーム安定化システムを用いた C_{60} 負イオンビームの時間変化

3.5 C₆₀ 負イオンの生成効率に関する考察

ビーム安定化システムを用いた C₆₀ 負イオンビーム強度の長時間測定 (図 21) では、40.5 時間で 200mg の C₆₀ が全て昇華した。図 22 (■) は、J.Abrefah らによる C₆₀ の温度に対する昇華率[μg/s]の実験結果である²⁵⁾。同図の実線で示す実験結果を内挿した温度・昇華率曲線から図 21 の温度の推移をもとに見積もった昇華量の積算 (図 23 実線) では 40.5 時間で 320mg の C₆₀ が昇華されたことになり、実際の昇華量よりも多い結果となる。るつぼ内の圧力が上昇すると C₆₀ の昇華率が減少することから、オープンロッドのるつぼ内の圧力が図 22 の実験に用いた昇華用るつぼ内の圧力よりも高くなっていたと考えられる。るつぼ内の圧力は、温度、容積、噴出口の断面積、昇華率、試料の表面積等の条件により異なる。40.5 時間で 200mg の C₆₀ が昇華したことから、オープンロッドのるつぼにおける昇華率は J.Abrefah らの実験におけるその 0.65 倍程度であったものと考えられ、図 23 の破線に示すような昇華量の積算となると仮定した。図 22 の実線に 0.65 を乗じて得られるるつぼ内の C₆₀ の昇華率とオープン温度との関係を図 22 の破線に示す。オープン温度が 600℃の時の昇華率は 1.1 [μg/s]であり、るつぼ内では毎秒 9.5×10^{14} 個の C₆₀ が昇華している。マグネットで分析後の C₆₀ 負イオンは 1.3×10^{11} 個であり、昇華量に対する割合 (生成効率) は 0.13%となる。生成効率には電子付着効率、引出し効率、輸送効率が寄与している。エミッション測定 (図 16) によるとアイオナイザーからは毎秒 1.3×10^{14} 個の熱電子が放出していることになるが、引出し効率及び輸送効率が経験上数十%として、電子付着断面積に着目すると、昇華量に対してアイオナイザーチェンバー内に十分な量の熱電子が供給されていないことが C₆₀ 負イオンビームの生成効率から推測される。しかし、アイオナイザーからの熱電子のエミッションをこれ以上増やすことは困難なため、フィラメント等の新たな電子源を用いることで更なる C₆₀ 負イオン生成量の増加が期待できると考えられる。

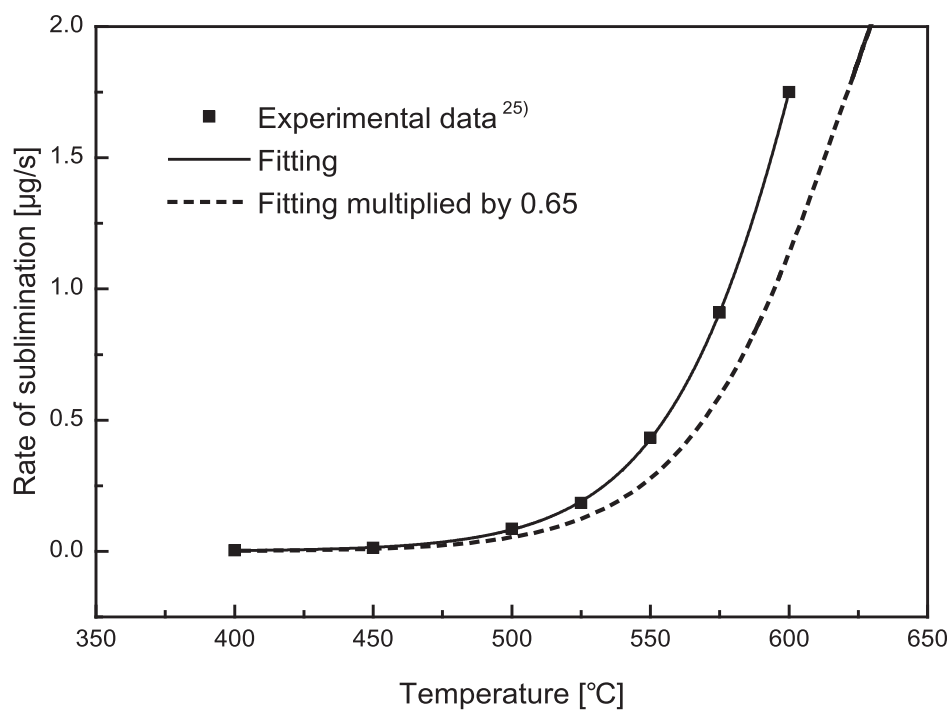


図 22. 温度と C_{60} の昇華率
 実線：温度と C_{60} の昇華率[μg/s]²⁵⁾を内挿
 破線：(内挿した値) × 0.65

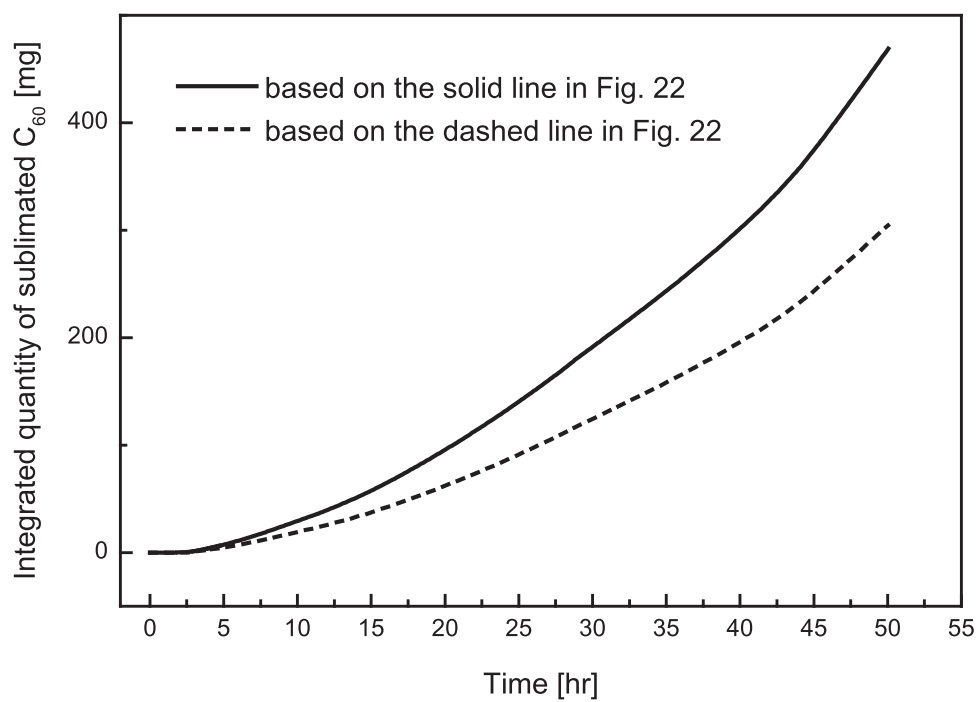


図 23. 昇華量の積算
 図 22 の温度-昇華率曲線をもとに図 21 の温度推移から積算

4. まとめ

セシウムスパッター型負イオン源 (SNICS II) を利用した電子付着方式による新たな生成法を開発した。従来のセシウムスパッター方式による生成法に比べて 1,000 倍以上 (30nA) の C_{60} 負イオンビームを約 12 時間生成することに成功した。この方式は従来方式との併用が可能で新たにイオン源を設置する必要がないため、広く用いられるセシウムスパッター型負イオン源を有する大学や研究機関へ容易に導入できることから高速 C_{60} イオンビームに関する研究の発展に大きく貢献するものである。H27 年度からの中長期計画の根幹となる C_{60} 負イオン源の開発では、ここでの知見をもとに更なる C_{60} 負イオンビームの高強度化を目指す。

謝辞

本技術開発のきっかけを与えてくださった筑波大学の冨田成夫先生、実験に協力してくださったタンデム加速器のオペレーターの方々、開発を進めるにあたってご助言をくださったビーム技術開発課の鳴海一雅課長に感謝いたします。

本報告書をまとめるにあたりご指導くださりました放射線高度利用施設部の横田渉部長、斎藤勇一次長、イオン加速器管理課の奈良孝幸課長、その他多くの方々に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) I. Yamada, J. Matsuo, N. Toyoda, Nucl. Instr. and Meth. B 206 (2003) 820.
- 2) D. Jacquet, Y. Le Beyec, Nucl. Instr. and Meth. B 193 (2002) 227.
- 3) K. Baudin, A. Brunelle, M. Chabot, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Gardks, P. Hskansson, Y. Le Beyec, A. Billebaud, M. Fallavier, J. Remillieux, J. C. Poizat, J. P. Thomas, Nucl. Instr. and Meth. B 94 (1994) 341.
- 4) A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, M. Pautrat, Ch. Schoppmann, Nucl. Instr. and Meth. B 125 (1997) 207.
- 5) A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, M. Pautrat, Phys. Rev. A 63 (2001) 022902.
- 6) S. Bouneau, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, M. Pautrat, M. Fallavier, J. C. Poizat, H. H. Andersen, Phys. Rev. B 65 (2002) 144106.
- 7) A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, M. Pautrat, Phys. Rev. A 59 (1999) 04456.
- 8) K. Narumi, K. Nakajima, K. Kimura, M. Mannami, Y. Saitoh, S. Yamamoto, Y. Aoki,

- H. Naramoto, Nucl. Instr. and Meth. B 135 (1998) 77.
- 9) Y. Saitoh, K. Mizuhashi, S. Tajima, Nucl. Instr. and Meth. A 452 (2000) 61.
 - 10) S. Tomita, M. Murakami, N. Sakamoto, S. Ishii, K. Sasa, T. Kaneko, H. Kudo, Phys. Rev. A 82 (2010) 044901.
 - 11) A. Chiba, Y. Saitoh, K. Narumi, M. Adachi, T. Kaneko, Phys. Rev. A 76 (2007) 063201.
 - 12) K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, Y. Kobayashi, Y. Ohara, Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 044105.
 - 13) H. Tsuchida, T. Majima, S. Tomita, K. Sasa, K. Narumi, Y. Saitoh, A. Chiba, K. Yamada, K. Hirata, H. Shibata, A. Itoh, Nucl. Instr. and Meth. B 315 (2013) 336.
 - 14) K. Nakajima, K. Nagano, M. Suzuki, K. Narumi, Y. Saitoh, K. Hirata, K. Kimura, Appl. Phys. Lett. 104 (2014) 114103.
 - 15) Y. Saitoh, H. Shibata, JAEA-Review 2009-066 (2009).
 - 16) TRIM cord J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, The Stopping and Ranges of Ions in Solids, Pergamon Press, New York, 1985.
 - 17) Y. Saitoh, A. Chiba, K. Narumi, Rev. Sci. Instr. 80 (2009) 106104.
 - 18) B. Waast, S. Della-Negra, A. Lafoux, Nucl. Instr. and Meth. A 382 (1996) 348.
 - 19) T. Wolfram, Phys. Rev. Lett. 29 (1972) 1383.
 - 20) Ming L. Yu, Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 574.
 - 21) H. S. Chen, A. R. Kortan, R. C. Haddon, D. A. Fleming, J. Phys. Chem. 96 (1992) 1016.
 - 22) C. I. Frum, Rolf Engleman Jr., Hartmut G. Hedderich, Peter F. Bernath, Lowell D. Lamb, Donald R. Huffman, Chem. Phys. Lett. 176 (1991) 504.
 - 23) 篠原久典, 齋藤弥八“フラーレンの科学と物理” 名古屋大学出版会 (1997) 57.
 - 24) M. Lezius, P. Scheier, T. D. Mark, Chem. Phys. Lett. 203 (1993) 232.
 - 25) J. Abrefah, D. R. Olander, Appl. Phys. Lett. 60, (1992) 1313.

セシウムスパッターイオン源を利用した電子付着による C_{60} 負イオン生成技術の開発

発行年月 2017 年 3 月

編集発行 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
量子ビーム科学研究部門 高崎量子応用研究所

連絡先 放射線高度利用施設部 イオン加速器管理課

TEL:027-346-9642 FAX:027-346-9690

E メール: chiba.atsuya@qst.go.jp

ホームページ : <http://www.taka.qst.go.jp>

印刷 上武印刷株式会社

©2016 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構／©2016 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

Printed in Japan

QST-R-1

JAEA-Technology 2016-034