

高速クラスターイオン照射における
固体内電子応答

椎名 陽子

2019年2月

筑波大学大学院博士課程

数理物質科学研究科博士論文

博士（工学）

高速クラスターイオン照射における

固体内電子応答

椎名 陽子

電子・物理工学専攻

概要

高速イオンビームは Rutherford 後方散乱分析 (RBS), 弾性反跳分析 (ERDA), 二次イオン質量分析 (SIMS) のような物質分析や, 照射によるナノ加工や物質改質, さらに粒子線がん治療や放射線育種など, さまざまな分野で広く利用されている. 高速イオンビームの中でも高速クラスターイオンビームは, 単原子イオンビームでは実現できない高い密度でエネルギーを固体へ付与することができ, 新しい物質分析法への応用が注目されている. すでに高い二次イオン・二次分子イオン生成効率, 標的の帯電の抑制といった生体試料や絶縁物に対する SIMS に有利な特性があるという報告がなされており, 今後の応用が期待されている. しかし, これらの高速クラスターイオン照射特有の効果のメカニズムについてはいまだに不明な点が多い. 今後高速クラスターイオンビームの応用を進める上で, 高速クラスターイオンを固体へ照射した際の基礎過程の解明が重要である.

Bohr 速度を超える速度をもつ高速のクラスターイオンを固体へ照射すると, 構成原子間の結合を担う電子は最初の数原子層のうちにイオン化され, クラスターイオンは複数の単原子イオンへと解離する. その後, 解離によって生成された単原子イオンはイオン間距離 1 \AA 程度の非常に近接した間隔で固体内を並走していく. クラスターイオンと固体原子・固体内の散乱電子との相互作用は, イオン間の距離が短い極限ではクラスターから解離したイオンがもつ電荷の和を電荷としてもつ 1 個のイオンと固体原子・散乱電子との相互作用として考えられ, 逆にイオン間の距離が長い極限ではクラスターから解離したイオンはそれぞれ独立に固体原子・散乱電子と衝突し, 単原子イオンを照射した場合と同様に振舞うと考えられる. このように単原子イオン照射の場合には固体内を進むイオンは電荷と速度によって特徴付けることができるが, クラスターイオン照射の場合にはさらにクラスターイオンから解離したイオンの空間的な配置が変数に加わる. 固体に高い密度でイオンが照射されることによって, クラスターイオン照射時には測定されるさまざまな物理量が同速度の単原子イオンを独立に照射した場合の物理量からずれる. このような効果は電子的阻止能, 平均電荷, スパッタリング収量, 二次電子収量などにあらわれることが知られており, 総じてクラスター効果と呼ばれている.

Bohr 速度を超える速度をもつ高速のイオンを固体へ照射した際, イオンと固体原子との相互作用は電子励起や電離による非弾性衝突が支配的である. よって高速イオンと固体の相互作用において, 固体内での電子の応答による物理量である電子的阻止能や二次電子収量が重要と考えられる. 単原子イオン照射時には二次電子収量はほぼ電子的阻止能に比例することがわかっている. 一方クラスターイオン照射時の単原子あたりの二次電子収量は, 単原子イオン照射時の二次電子収量に比べて数割程度減少する. これはクラスターイオン照射時の電子的阻止能が単原子照射時に比べて数 % 程度しか変化しないのに比べて非常に強い効果であり, クラスターイオン照射時の二次電子収量は電子的阻止能に比例していない.

通常, 二次電子の生成過程は 3 ステップのモデルで考えられている. まず固体へ入射したイオンが固体原子と非弾性衝突することによって, 固体原子がイオン化され散乱電

子が生成される（生成過程）．次に生成された散乱電子の一部が固体内を移動し、固体表面へと到達する（輸送過程）．最後に固体表面付近に到達した電子のうち表面の仕事関数を越えるエネルギーをもつ電子が、表面から固体外へ放出される（脱出過程）．散乱電子の生成過程における散乱電子の生成量はイオンの電子的阻止能に比例すると考えられるが、クラスターイオン照射時の二次電子収量が電子的阻止能に比例していないことから、二次電子収量におけるクラスター効果は散乱電子の生成過程ではなく散乱電子の輸送過程か固体表面からの脱出過程のいずれかに深く関わっていると考えられる．

本研究では散乱電子の固体内での輸送過程に着目し、高速クラスターイオンを固体薄膜に照射した際の0度電子分光測定を行った．特にイオンに同速度で伴走する電子（convoy 電子）の収量と、固体薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量におけるクラスター効果を調べた．

3.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 3$) イオンをさまざまな膜厚の固体薄膜へ照射して convoy 電子収量を測定した結果、 C^+ 照射時における convoy 電子収量は測定した範囲の標的膜厚に対してほぼ一定だったのに対し、 C_2^+ 、 C_3^+ 照射時における convoy 電子収量は標的膜厚が厚くなるにしたがって指数関数的に減衰し、 $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ より厚い薄膜では標的膜厚の変化に対してほぼ一定になった．また、厚い薄膜で convoy 電子収量が収束する値は C^+ 照射、 C_2^+ 照射、 C_3^+ 照射の順に増加した．これらの結果から C_2^+ 、 C_3^+ 照射時には C^+ 照射時に比べて convoy 電子の減衰長が長くなっていることがわかった．

Convoy 電子の減衰長は、固体内において照射イオンに対する相対エネルギーの小さい電子が照射イオンの軌道半径の大きい束縛状態（Rydberg 状態）への捕獲とイオン化を繰り返すことによって同速度の自由電子よりも長くなると考えられる．クラスターイオン照射の場合は、Rydberg 状態の軌道半径に比べて狭い領域に複数のイオンが照射されることによって Rydberg 状態が複数のイオンによる束縛状態になり、さらに減衰長が伸びたと解釈することができる．

また、3.5 MeV/atom C^+ 、 C_2^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射し、薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量を測定した結果、 C_2^+ 照射時における Auger 電子収量が C^+ 照射時に比べて減少する効果がみられた．さらに C_2^+ 照射時における Auger 電子収量の C^+ 照射時の収量に対する比は、Auger 電子が放出された Rydberg 状態の主量子数 n が大きいほど増加する傾向があった．Convoy 電子と同様の過程で生成される薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態にも、クラスター効果があらわれていることが確かめられた．

数 eV 以下の非常に小さい束縛エネルギーの Rydberg 状態が固体内で存在し、convoy 電子の輸送過程で重要な役割を果たすことが実験的に示されたことは新しく、興味深い．見方を変えれば、本研究では高速クラスターイオンを用いて、クラスターに限らない高速イオンを固体へ照射した際の固体内における散乱電子の輸送過程を調べたともいえる．高速クラスターイオンを固体へ照射した際の基礎過程を調べることが、高速イオンを固体へ照射した際の基礎過程を解明するうえでも重要だということが再確認された．

また、本研究で着目したのは固体内でイオンに伴走する電子から生成される convoy 電子やイオンの Rydberg 状態におけるクラスター効果だが、イオン間距離に鈍感で長いイオン間距離まで残り続けるという傾向は二次電子収量におけるクラスター効果も共

通している．このことから，本研究における結果は固体内でイオンに伴走する電子が散乱電子の輸送過程で重要な役割を果たしている可能性を示唆していると考えられる．

目次

第 1 章	序論	1
1.1	高速クラスターイオンの固体への照射	1
1.2	電子的阻止能におけるクラスター効果	2
1.3	電子放出におけるクラスター効果	4
1.4	本論文の構成	6
第 2 章	実験	14
2.1	0 度電子分光	14
2.2	実験装置	15
2.3	0 度電子分光スペクトルの全体図	16
第 3 章	Convoy 電子	22
3.1	Convoy 電子収量の標的膜厚依存性	22
第 4 章	透過イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子	27
第 5 章	考察	34
5.1	Convoy 電子収量の標的膜厚依存性の減衰関数による模式化	34
5.2	イオンに伴走する電子の減衰長におけるクラスター効果	36
5.3	散乱電子の固体内輸送過程におけるクラスター効果	37
第 6 章	結論	41
	謝辞	43
	関連論文	45
付録 A	透過イオンから放出された KLL Auger 電子	46
付録 B	イオン間のクーロン反発による電子エネルギーの広がり	53
	参考文献	58

第 1 章

序論

高速イオンビームは Rutherford 後方散乱分析 (RBS), 弾性反跳分析 (ERDA), 二次イオン質量分析 (SIMS) のような物質分析や, 照射によるナノ加工や物質改質, さらに粒子線がん治療や放射線育種など, さまざまな分野で広く利用されている. 高速イオンビームの中でも高速クラスターイオンビームは, 単原子イオンビームでは実現できない高い密度でエネルギーを固体へ付与することができ, 新しい物質分析法への応用が注目されている. すでに高い二次イオン・二次分子イオン生成効率 [1, 2], 標的の帯電の抑制 [3] といった生体試料や絶縁物に対する SIMS に有利な特性があるという報告がなされており, 今後の応用が期待されている. しかし, これらの高速クラスターイオン照射特有の効果のメカニズムについてはいまだに不明な点が多い. 今後高速クラスターイオンビームの応用を進める上で, 高速クラスターイオンを固体へ照射した際の基礎過程の解明が重要である.

1.1 高速クラスターイオンの固体への照射

高速クラスターイオンの単純な例として, Bohr 速度より速い速度 v_i をもつ二原子分子イオン A_2^+ を考える [4]. A_2^+ が固体へ入射すると, 構成原子間の結合を担う電子は最初の数原子層のうちにイオン化され, A_2^+ は 2 個の単原子イオン A^{q_1+} , A^{q_2+} へと解離する. 解離によって生成された 2 個のイオンは, それぞれ固体原子との非弾性散乱を繰り返しながら互いに近接した状態で固体内を進んでいく. A_2^+ が解離した直後, 2 個のイオン間の距離は分子の結合距離 1 \AA 程度である. その後 2 個のイオンが並走して固体内を進んでいくうちに, イオン間距離は 2 個のイオン間のクーロン反発や, イオンと固体原子の多重散乱によって少しずつ広がっていく. クラスターイオンと固体原子・固体内の散乱電子との相互作用は, イオン間の距離が短い極限ではクラスターから解離したイオンがもつ電荷の和 $q_1 + q_2$ を電荷としてもつ 1 個のイオンと固体原子・散乱電子との相互作用として考えられ, 逆にイオン間の距離が長い極限ではクラスターから解離したイオン A^{q_1+} , A^{q_2+} はそれぞれ独立に固体原子・散乱電子と衝突し, 単原子イオンを照射した場合と同様に振舞うと考えられる. 単原子イオン照射の場合には固体内を走るイオンは電荷と速度で特徴付けることができるが, クラスターイオン照射ではさらに, 照射したクラスターイオンから解離したイオンの空間的な配置が変数に加わる.

A_2^+ を固体へ照射した際に測定できる物理量は、イオン間距離が十分離れておりそれぞれのイオンが独立に固体原子と衝突するとみなせるような条件下では単原子イオンを2個照射した場合と一致するだろう。イオン間距離が短く、それぞれのイオンの固体原子との衝突が独立とみなせないような条件下では、単原子イオンを2個照射した場合の結果からずれると考えられる。実際に高速クラスターイオンを固体へ照射した時に測定される物理量が、同速度の単原子イオンを独立に照射した場合の物理量からずれるという報告が数多くなされている。このような効果は電子的阻止能 [5, 6, 7, 8], 平均電荷 [9, 10], スパッタリング収量 [1, 2], 二次電子収量 [11, 12] などにあらわれることが知られており、総じてクラスター効果と呼ばれている。

1.2 電子的阻止能におけるクラスター効果

Bohr 速度を超える速度をもつ高速のイオンを固体へ照射した際、イオンと固体原子との相互作用は固体原子の電子励起や電離などの非弾性衝突が支配的である。よって高速イオンと固体の相互作用において、電子的阻止能や二次電子収量が重要な物理量と考えられる。電子的阻止能とはイオンが単位距離進む間に非弾性衝突によって失うエネルギーのことである。高速イオンを固体へ照射した場合にはイオンと固体原子の衝突は非弾性衝突が支配的になるため、電子的阻止能 $(dE/dx)_e$ をイオンが固体内を進んだ距離 x に対して積分することでイオンが失ったエネルギー ΔE が得られる。

$$\Delta E = \int \left(\frac{dE}{dx} \right)_e dx \quad (1.1)$$

図 1.1 は富田ら [8] が測定した、0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを 5.70 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的へ照射した時の標的入射前のイオンのエネルギーと標的透過後のイオンのエネルギーの差（エネルギー損失）である。横軸は照射イオンを構成する原子の数 n 、縦軸は単原子当たりのエネルギー損失の C^+ 照射時との差 $\Delta E(C_n^+)/n - \Delta E(C^+)$ である。もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時のエネルギー損失が C^+ を n 個照射した時のエネルギー損失の和に一致するならば、図 1.1 上のプロットは $\Delta E(C_n^+)/n - \Delta E(C^+) = 0$ の直線上にのる。図 1.1 中にはエネルギー損失の実験値と計算値がともに示されている。

図 1.1 より、 C^+ 照射時のエネルギー損失に比べて、 C_2^+ , C_3^+ , C_4^+ 照射時のエネルギー損失は単原子当たり 1 keV 程度減少している。これは C^+ 照射時のエネルギー損失 22.7 keV に対して 4% 程度の減少である。 C_2^+ , C_3^+ , C_4^+ 照射時には固体内に高い密度でイオンが照射されることによって、エネルギー損失が C^+ 照射時の値からずれていることがわかる。実験結果と計算値を比較すると、計算値が実験結果をおおまかに再現している。この計算はそれぞれのイオンがつくる wake potential の干渉をとりいれたもので、電子的阻止能におけるクラスター効果の機構は wake potential の干渉と平均電荷におけるクラスター効果によっておおむね理解されている [5, 10]。

また富田らの実験では標的膜厚 18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ についても同様にエネルギー損失を測定している。 C_2^+ , C_4^+ イオンを膜厚 5.70, 18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の薄膜標的へ照射した際のエネルギー損失の測定結果を表 1.1 に示す。 C_2^+ 照射, C_4^+ 照射それぞれについて、標的膜厚

5.70, 18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する $\Delta E(\text{C}_n^+)/n - \Delta E(\text{C}^+)$ は誤差の範囲内で一致している。これより電子的阻止能におけるクラスター効果はイオンが標的膜厚 5.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に達するより前に起こっていると考えられる。

表 1.1 0.5 MeV/atom C_2^+ , C_4^+ イオンを膜厚 5.70, 18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜標的へ照射した際のイオンの単原子当たりのエネルギー損失の C^+ 照射時との差 $\Delta E(\text{C}_n^+)/n - \Delta E(\text{C}^+)$ [8].

	5.70 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$
C_2^+	-0.90 ± 0.11 keV	-0.71 ± 0.33 keV
C_4^+	-1.07 ± 0.39 keV	-1.44 ± 0.45 keV

ここでクラスターから解離によって生成されたイオン間の距離がどの程度の領域で電子的阻止能におけるクラスター効果が起こっているのかを知るために、膜厚 5.70, 18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜標的を脱出する際のイオン間の距離を見積もる。固体標的に C_2^+ イオンが入射すると、構成原子間の結合を担う電子は最初の数原子層のうちにイオン化され、 C_2^+ は 2 個の単原子イオンへと解離する。その後 2 個のイオンが並走して固体内を進んでいくうちに、イオン間距離は 2 個のイオン間のクーロン反発や、イオンと固体原子の多重散乱によって少しずつ広がっていく。ここで C_2^+ イオンは固体標的に入射した直後に平均平衡電荷をもつ 2 個のイオンへ解離し、その後 2 個のイオン間のクーロン反発によってイオン間距離が広がると仮定する。このように仮定すると、ある膜厚を進んだときのイオン間の距離 $R(t)$ は運動方程式から求めることができる。解離によって生成されたイオンの電荷を Z_1, Z_2 , 質量を M_1, M_2 とおく。さらに t を C_2^+ イオンが固体へ入射してからの時刻, $R(0) \equiv R_0$ を固体標的に入射したときのイオン間の距離として、以下の方程式が成り立つ [5].

$$t = t_0 \left\{ \xi^{1/2} (\xi - 1)^{1/2} + \ln \left[\xi^{1/2} + (\xi - 1)^{1/2} \right] \right\} \quad (1.2)$$

$t_0 \equiv (\mu R_0^3 / Z_1 Z_2 e^2)^{1/2}$, $\xi \equiv R/R_0$, $\mu \equiv M_1 M_2 / (M_1 + M_2)$ である。式 1.2 に適当なイオン間の距離 $\xi \equiv R/R_0$ を代入するとそのイオン間距離に到達する時刻 t が求められる。イオンの速度はイオンのエネルギーからわかるため、時刻 t におけるイオンの固体入射側表面からの距離が求められる。

C_2^+ イオンのエネルギーを 0.5 MeV/atom, 平均平衡電荷を 1.32[13], 固体薄膜入射時の C_2^+ の結合距離を 1.245 Å[14] として、標的膜厚と標的脱出時のイオン間距離の関係を求めた結果を図 1.2 に示す。イオン間の距離は固体薄膜へ入射した直後は 1.245 Å で、標的膜厚 5.70 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に達したとき約 2 Å, 18.4 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に達したとき約 6 Å である。電子的阻止能におけるクラスター効果はイオンが標的膜厚 5.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に達するより前に起こっていることから、電子的阻止能におけるクラスター効果はイオン間距離が 2 Å 以下の領域において起こっていると考えられる。

1.3 電子放出におけるクラスター効果

1.3.1 標的前方へ放出される電子のエネルギースペクトル

クラスター効果のもう一つの例として、固体標的に高速クラスターイオンを照射した際に標的前方へ放出される電子のエネルギースペクトルをみってみる。図 1.3 は富田ら [15] が測定した、 $0.5 \text{ MeV/atom } C_n^+$ ($n = 1 - 4$) イオンを炭素薄膜標的へ照射した際に標的前方へ放出された電子のエネルギースペクトルである。横軸が電子エネルギー、縦軸が単原子当たりの電子収量になっており、もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時の電子収量が C^+ を n 個照射した時の電子収量の和に一致するならば、図 1.3 上で C_n^+ 照射時のエネルギースペクトルは C^+ 照射時のエネルギースペクトルに重なる。ここで標的の前方へ放出される電子とは、照射イオンが標的から脱出する側の表面から放出される電子のことを指す。逆に照射イオンが標的へ入射する側の表面から放出される電子を、標的の後方へ放出される電子という。

図 1.3 上の C^+ 照射時の電子エネルギースペクトルをみると、放出された電子の大部分は数 eV 程度の低エネルギーの二次電子である。電子エネルギーが高くなるにつれ電子収量が減少し、91.4 eV 付近からさらに急激に電子収量が減少している。91.4 eV は $0.5 \text{ MeV } C$ 原子が静止した電子と弾性衝突した際に電子に与える最大のエネルギーに相当する。このスペクトルはイオンを固体へ照射した際に前方で測定される電子の典型的なエネルギースペクトルに一致する。

数 eV 程度の低エネルギーの電子から 100 eV 程度の電子まで全体的に、単原子当たりの電子収量は C^+ , C_2^+ , C_3^+ , C_4^+ 照射の順に減少している。 C^+ 照射時の電子エネルギースペクトルと C_4^+ 照射時のスペクトルを比較すると、ピークのある 3 eV 付近で C_4^+ 照射時の電子収量は C^+ 照射時の半分程度であり、100 eV 以上の高エネルギー電子では C_4^+ 照射時と C^+ 照射時の電子収量の差は小さくなっている。ただし 22.9 eV 付近にあるピークだけ C_4^+ 照射時の電子収量の方が C^+ 照射時の電子収量よりも多い。 C_2^+ , C_3^+ , C_4^+ 照射時には固体内に高い密度でイオンが照射されることによって、電子エネルギースペクトルが C^+ 照射時のものからずれていることがわかる。

図 1.3 の 3 eV 付近の低エネルギーの二次電子について、 C^+ 照射時に対して電子収量がどの程度変化したかをみってみる。 C_n^+ ($n = 1 - 4$) 照射時の二次電子収量を $Y(C_n^+)$ とおく。 C_n^+ ($n = 1 - 4$) を膜厚 3.2, 7.3, 11.9, 20.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜標的へ照射し、単原子あたりの二次電子収量 $Y(C_n^+)/n$ を照射したイオンを構成する原子数 n に対してプロットしたものを図 1.4 に示す。もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時の二次電子収量が C^+ を n 個照射した時の二次電子収量の和に一致するならば、図 1.4 上のプロットは標的膜厚ごとに水平な直線の上に並ぶ。3.2 – 20.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ まですべての膜厚において単原子あたりの二次電子収量は C^+ , C_2^+ , C_3^+ , C_4^+ の順に減少しており、たとえば膜厚 7.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的に C_4^+ を照射した時の二次電子収量は C^+ 照射時の 4 割程度にまで減っている。クラスターイオン照射時の二次電子収量は単原子イオン照射時に比べて非常に強く抑制されることがわかる。また同じ条件下で電子的阻止能におけるクラス

ター効果がイオンが標的膜厚 $5.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ に達するより前に起こっているのに対し、二次電子収量におけるクラスター効果は標的膜厚 $20.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ と非常に厚い標的でも残っている。図 1.2 より $0.5 \text{ MeV}/\text{atom}$ C_2^+ イオンを $20.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的へ照射した場合、クラスターから解離によって生成されたイオンが標的を脱出する際のイオン間の距離は約 7 \AA である。二次電子収量におけるクラスター効果はイオン間距離が約 7 \AA まで広がっても残り続けていると考えられる。

また図 1.3 中で唯一 C_4^+ 照射時の電子収量の方が C^+ 照射時よりも電子収量が多くなっている 22.9 eV 付近のピークについて、 C^+ 照射時に対して電子収量がどの程度変化しているかをみる。 22.9 eV は照射イオン $0.5 \text{ MeV}/\text{atom}$ C_n^+ と同じ速度を持つ電子のエネルギーに相当し、このようなイオンに同速度で伴走する電子を特に *convoy* 電子と呼ぶ。*Convoy* 電子はイオンが進行する方向 (0 度方向) 付近の狭い立体角にしか放出されない。 C_n^+ ($n = 1 - 4$) 照射時の *convoy* 電子収量を $Y_c(\text{C}_n^+)$ とおく。 C_n^+ 照射時の単原子あたりの *convoy* 電子収量 $Y_c(\text{C}_n^+)/n$ を照射したイオンを構成する原子数 n に対してプロットした結果を図 1.5 に示す。横軸は照射したイオンを構成する原子の数 n 、縦軸は単原子あたりの *convoy* 電子収量 $Y_c(\text{C}_n^+)/n$ である。膜厚 $3.2, 7.3, 11.9, 20.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜標的に対する結果がそれぞれプロットされている。もしクラスター効果がないなら、図 1.5 上のプロットは標的膜厚ごとに水平な直線上にのる。図 1.5 より単原子あたりの *convoy* 電子収量は $\text{C}^+, \text{C}_2^+, \text{C}_3^+, \text{C}_4^+$ の順に大きく増加しており、おおまかに照射イオンの構成原子数 n と比例関係にある。全 *convoy* 電子収量で考えると、 C_n^+ 照射時の収量は C^+ 照射時の n^2 倍に増加していることになる。また *convoy* 電子収量におけるクラスター効果も二次電子収量におけるクラスター効果と同様に、標的膜厚 $20.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ と非常に厚い標的でも残っている。

1.3.2 二次電子の生成過程とクラスター効果

二次電子の生成過程としては、ポテンシャル放出とカイネティック放出の 2 つの過程が報告されている。ポテンシャル放出は、低速の高電離イオンを固体へ照射した場合などに固体表面の原子が照射イオンのポテンシャルによってイオン化され二次電子が生成される過程である。一方カイネティック放出は、主に高速イオン照射でイオンがもつ運動エネルギーが固体電子に付与されることで二次電子が生成される過程である。カイネティック放出による二次電子の生成過程は、通常 3 ステップのモデルで考えられる [16, 17]。まず固体へ入射したイオンによって固体原子がイオン化され、散乱電子が生成される (生成過程)。次に生成された散乱電子の一部が固体内を移動し、固体表面へと到達する (輸送過程)。最後に固体表面付近に到達した電子のうち表面の仕事関数を越えるエネルギーをもつ電子が、表面から固体外へ放出される (脱出過程)。

散乱電子の生成過程において生成される散乱電子の数は、電子的阻止能に比例する。図 1.6 に、Rothard ら [16] が測定した高速イオン照射時に炭素薄膜標的から放出される二次電子の収量の電子的阻止能依存性を示す。横軸は電子的阻止能、縦軸は標的から前方・後方へ放出された二次電子の収量の合計である。照射イオンは H イオンから U イオン、核子あたりのエネルギーは 15 keV から 16 MeV と非常に幅広い。図 1.6 から、

単原子イオン照射の場合の二次電子収量は非常に広いエネルギー領域に渡って電子的阻止能に比例することがわかる。

一方、クラスターイオン照射の場合の二次電子収量と電子的阻止能の関係をみてみる。図 1.7 に $0.5 \text{ MeV/atom } C_n^+$ ($n = 1 - 4$) イオンを $5.6 - 5.7 \mu\text{g/cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的へ照射した時の、エネルギー損失におけるクラスター効果と二次電子収量におけるクラスター効果の強さをそれぞれ示す [8, 15]。横軸は照射したイオンを構成する原子の数 n である。縦軸は単原子あたりのエネルギー損失の C^+ 照射時に対する比 $\Delta E(C_n^+)/n\Delta E(C^+)$ と、単原子あたりの二次電子収量の C^+ 照射時に対する比 $Y(C_n^+)/nY(C^+)$ を示している。もし電子的阻止能と二次電子収量が比例関係にあるなら、単原子あたりの二次電子収量の C^+ 照射時に対する比 $Y(C_n^+)/nY(C^+)$ は、単原子あたりのエネルギー損失の C^+ 照射時に対する比 $\Delta E(C_n^+)/n\Delta E(C^+)$ と同程度になるはずである。しかし実際には C_4^+ 照射の場合で $\Delta E(C_4^+)/4\Delta E(C^+)$ が約 0.96, $Y(C_4^+)/4Y(C^+)$ が約 0.4 と、二次電子収量の方がエネルギー損失よりずっと強く抑制されている。クラスターイオン照射の場合には、電子的阻止能と二次電子収量は比例していない。

二次電子収量におけるクラスター効果が電子的阻止能におけるクラスター効果よりずっと強く、クラスターから解離したイオン間の距離が長くなっても残り続けることから、二次電子収量におけるクラスター効果はイオンが散乱電子を生成する過程ではなく、散乱電子が固体内で輸送される過程か表面から脱出する過程のいずれかに深く関わっていると考えられる。

本研究では散乱電子の固体内での輸送過程に着目し、高速クラスターイオンを照射した際の固体内の散乱電子の振る舞いについての知見を得るために、0 度電子分光測定を行った。特に convoy 電子収量と、固体薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量がクラスターイオン照射時に単原子照射時に比べてどのように変化するかを調べた。

1.4 本論文の構成

1 章では本研究を行う背景と目的について述べた。2 章では 0 度電子分光法と実験装置について述べる。3 章で高速クラスターイオン照射時の convoy 電子収量の測定結果、4 章で薄膜を透過した入射イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量の測定結果について述べる。5 章で高速クラスターイオン照射時の convoy 電子収量、薄膜を透過した入射イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量の実験結果を踏まえて考察を行う。6 章で結論を述べる。また本研究の過程で得られた結果のうち、本論文の結論に直接関わらないが興味深いものを巻末に付録としてまとめた。

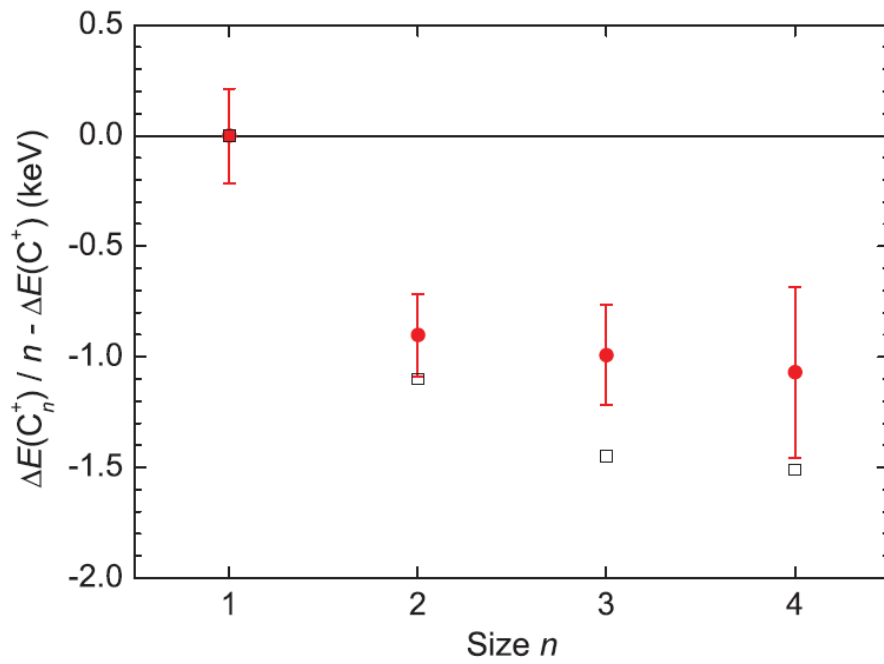


図 1.1 0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを $5.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的へ照射した時のイオンのエネルギーと標的透過後のイオンのエネルギーの差（エネルギー損失）[8]. 横軸は照射イオンを構成する原子の数 n , 縦軸は単原子当たりのエネルギー損失の C^+ 照射時との差 $\Delta E(C_n^+)/n - \Delta E(C^+)$ である. もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時のエネルギー損失が C^+ を n 個照射した場合のエネルギー損失の和に一致するならば, 図 1.1 上のプロットは $\Delta E(C_n^+)/n - \Delta E(C^+) = 0$ の直線上にのる. 丸のプロットが実験結果, 四角のプロットが計算値を示している.

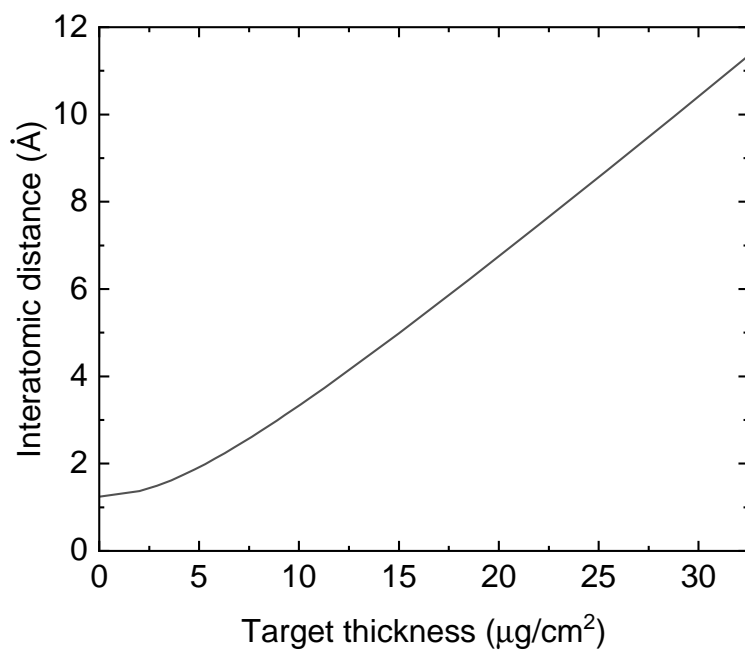


図 1.2 0.5 MeV/atom C_2^+ 二原子分子イオンを炭素薄膜標的へ照射した際の標的膜厚と標的脱出時のイオン間距離の関係. C_2^+ イオンは標的入射直後に平均平衡電荷 1.32[13] をもつ 2 個のイオンへ解離し, その後 2 個のイオン間のクーロン反発によってイオン間の距離が広がっていくと仮定している.

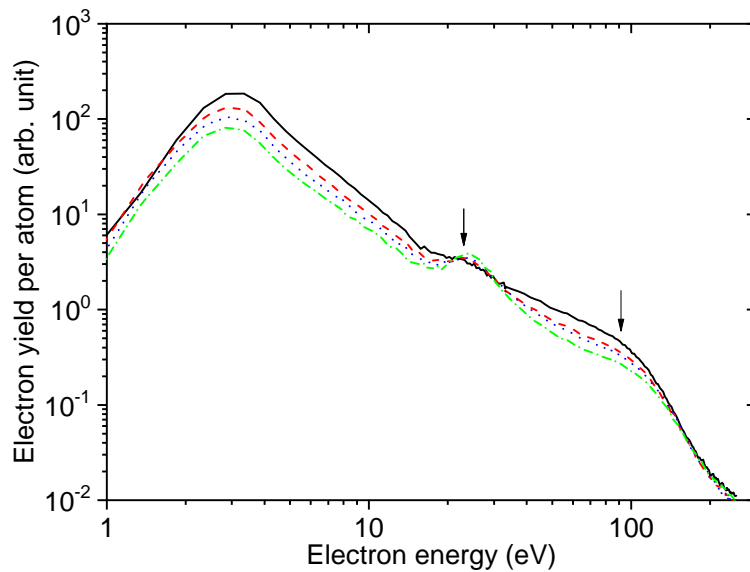


図 1.3 0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを $5.6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的へ照射した際に標的前方へ放出された電子のエネルギースペクトル [15]. 両対数グラフで、横軸が電子エネルギー、縦軸が単原子当たりの電子収量になっている。 C^+ , C_2^+ , C_3^+ , C_4^+ イオン照射時のスペクトルがそれぞれ実線、破線、点線、一点鎖線で示されている。もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時の電子収量が C^+ を n 個照射した時の電子収量の和に一致するならば、図中で C_n^+ 照射時のエネルギースペクトルはすべて C^+ 照射時のエネルギースペクトルに重なる。22.9 eV 付近にピークがある。22.9 eV は照射イオン 0.5 MeV/atom C_n^+ と同じ速度を持つ電子のエネルギーに相当し、このようなイオンに同速度で伴走する電子を特に convoy 電子と呼ぶ。また、91.4 eV より高い電子エネルギーで電子収量が急激に減少している。91.4 eV は 0.5 MeV C が静止した電子と弾性衝突した際に電子に与える最大のエネルギーに相当する。このスペクトルはイオンを固体へ照射した際に測定される電子の典型的なエネルギースペクトルに一致する。

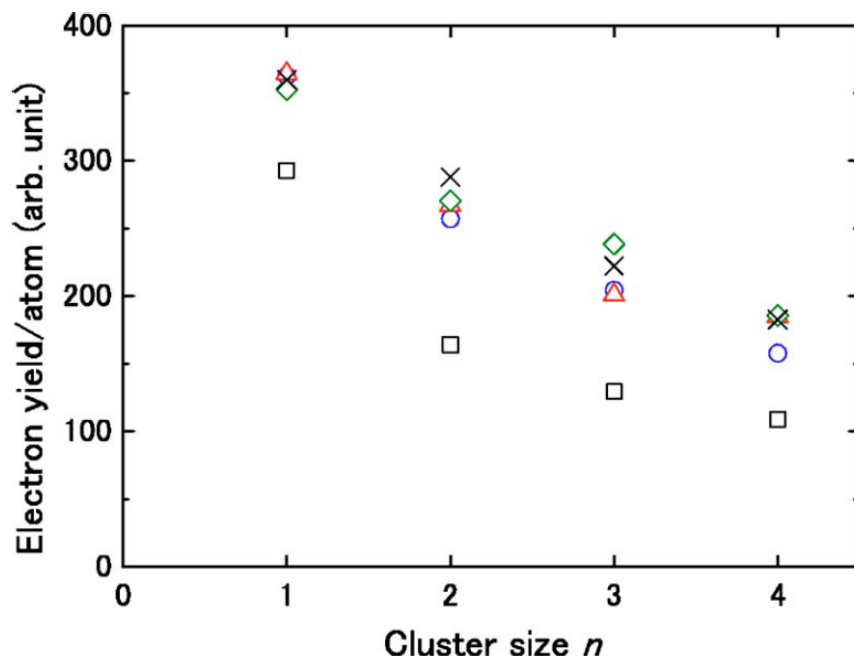


図 1.4 0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを炭素薄膜標的へ照射した際に標的前方へ放出された二次電子の単原子当たりの収量 [15]. 横軸は照射イオンを構成する原子の数 n , 縦軸は単原子当たりの二次電子収量である. 標的膜厚 3.2, 7.3, 11.9, 20.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する結果がそれぞれ四角, 丸, 三角, ダイヤモンドで示されている. クロスは HOPG 標的に 0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを照射した際に標的後方へ放出された電子の収量で, C^+ イオンを照射したときの電子収量が 7.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜と一致するように規格化されている. もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時の二次電子収量が C^+ を n 個照射した時の二次電子収量の和に一致するならば, 図中のプロットは膜厚ごとに水平な直線の上に並ぶ.

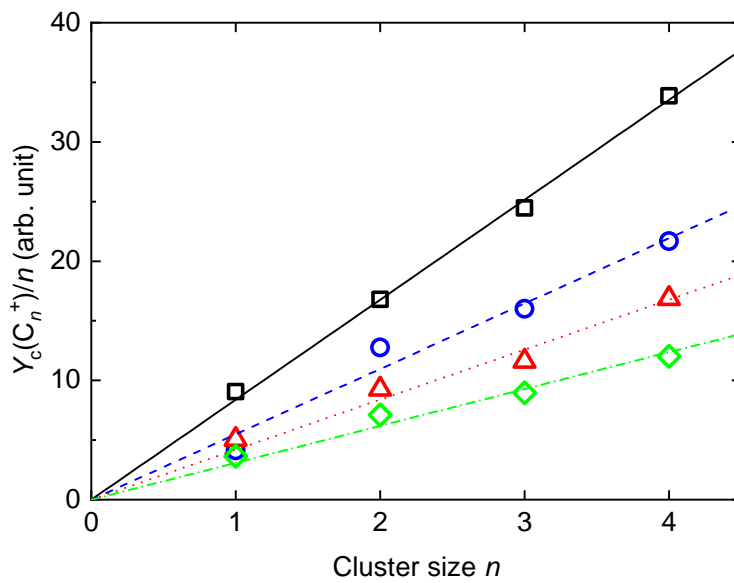


図 1.5 0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを炭素薄膜標的へ照射した時の，単原子あたりの convoy 電子収量 [15]．横軸は照射したイオンを構成する原子の数 n ，縦軸は単原子あたりの convoy 電子収量 $Y_c(C_n^+)/n$ である．標的膜厚 3.2, 7.3, 11.9, 20.3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する結果がそれぞれ四角，丸，三角，ダイヤモンドで示されている．もしクラスター効果がなく C_n^+ 照射時の convoy 電子収量が C^+ を n 個照射した時の convoy 電子収量の和に一致するならば，図中のプロットは膜厚ごとに水平な直線の上に並ぶ．

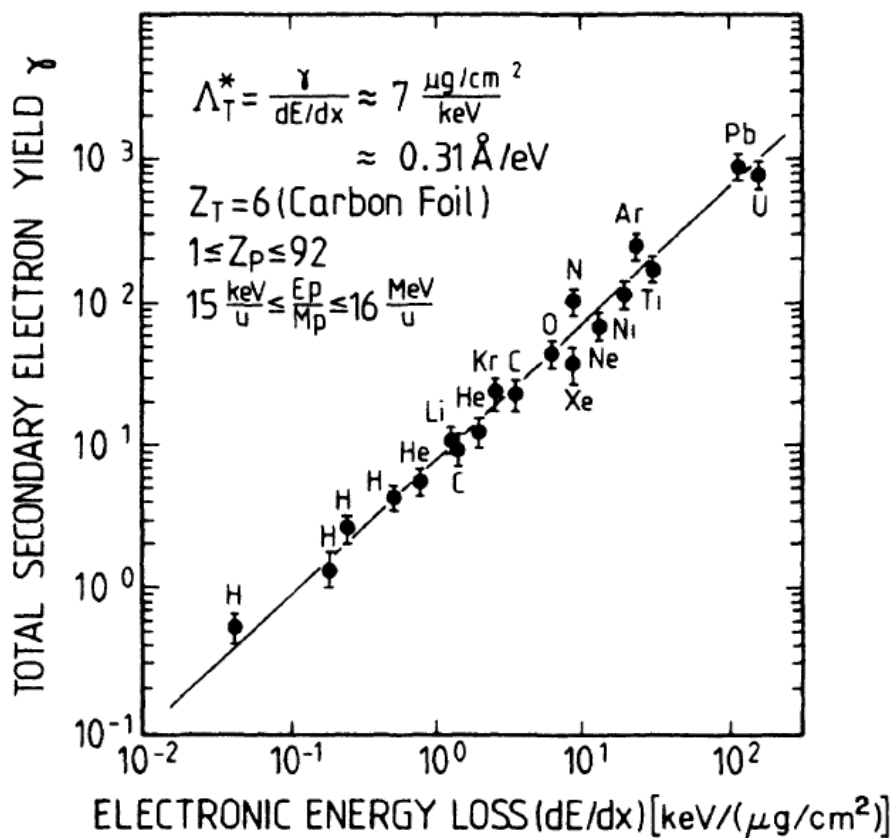


図 1.6 高速イオン照射時に炭素薄膜標的から放出される二次電子の収量の電子的阻止能依存性 [16]. 横軸は電子的阻止能, 縦軸は標的から前方・後方へ放出された二次電子の収量の合計である. 照射イオンは H イオンから U イオン, 核子あたりのエネルギーは 15 keV から 16 MeV と非常に幅広い.

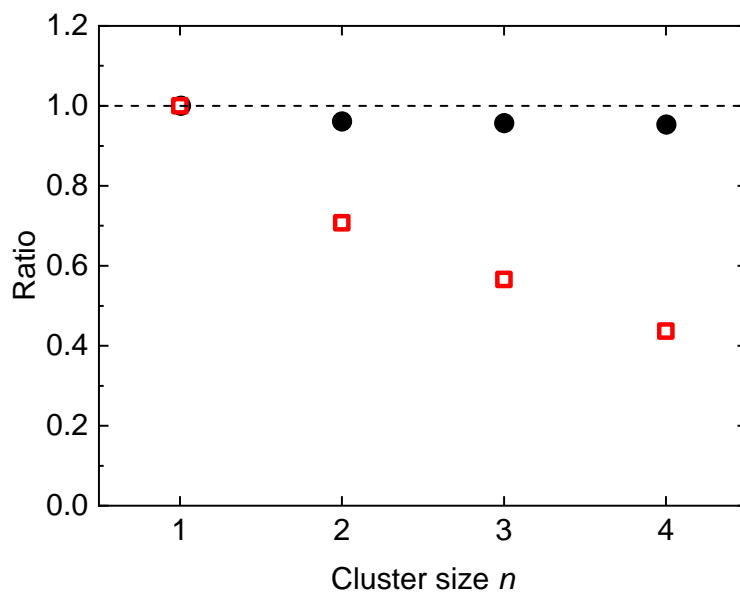


図 1.7 0.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 4$) イオンを $5.6 - 5.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的へ照射した時の、エネルギー損失におけるクラスター効果と二次電子収量におけるクラスター効果の強さの比較 [8, 15]. 横軸は照射したイオンを構成する原子の数 n である. 単原子あたりのエネルギー損失の C^+ 照射時に対する比 $\Delta E(C_n^+)/n\Delta E(C^+)$ が丸, 単原子あたりの二次電子収量の C^+ 照射時に対する比 $Y(C_n^+)/nY(C^+)$ が四角で示されている. もしクラスター効果がないなら, すべてのプロットは縦軸の値が 1 の水平な直線上にのる.

第 2 章

実験

本研究では散乱電子の固体内での輸送過程に着目し、高速クラスターイオンを固体薄膜に照射した際の 0 度電子分光測定を行った。特に convoy 電子収量と、薄膜を透過した入射イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量におけるクラスター効果を調べた。

本章では測定に用いた 0 度電子分光法と、実験装置について述べる。

2.1 0 度電子分光

標的から 0 度方向（ビーム進行方向）へ放出される convoy 電子を測定するため、0 度電子分光を行った。0 度電子分光は照射したイオンから放出される Auger 電子のエネルギースペクトルを測定するにも適した電子分光法である [18]。

0 度電子分光では照射したイオンが透過するような薄い標的を用意してイオンビームを照射し、0 度方向（ビーム進行方向）に設置された電子エネルギー分光器で電子のエネルギースペクトルを測定する。0 度方向では標的から 0 度方向へ放出された二次電子、標的を透過したイオンに同速度で伴走する電子（convoy 電子）、標的を透過したイオンから 0 度方向と 180 度方向へ放出された Auger 電子が測定できる。透過イオンから放出された Auger 電子の実験室系における速度は、イオンの速度と Auger 電子のイオン静止系における速度の和になる。0 度方向で測定される電子だけを考えれば以下のように書ける。

$$\sqrt{\varepsilon_l} = \sqrt{\varepsilon_i} \pm \sqrt{\varepsilon_p} \quad (2.1)$$

ここで ε_l は Auger 電子の実験室系におけるエネルギー、 ε_p は電子のイオン静止系におけるエネルギー、 ε_i は透過イオンと同速度の電子の実験室系におけるエネルギーである。0 度方向で観測される Auger 電子はイオンから放出された位置に関わらず、イオンから 0 度方向と 180 度方向へ放出された電子である。イオンからの放出角の違いによる電子エネルギーの広がりが増えるため、高い分解能で Auger 電子ピークを測定することができる。式 2.1 より、0 度方向で測定される Auger 電子の実験室系におけるエネルギー ε_l は以下のように書ける。

$$\varepsilon_l = (\sqrt{\varepsilon_i} \pm \sqrt{\varepsilon_p})^2 \quad (2.2)$$

$$= \varepsilon_i + \varepsilon_p \pm 2\sqrt{\varepsilon_i\varepsilon_p} \quad (2.3)$$

$\sqrt{\varepsilon_i} - \sqrt{\varepsilon_p} < 0$ の場合、イオンから 180 度方向へ放出される電子は速度が実験室系で負になり、0 度方向で観測できない。測定した実験室系のエネルギーは以下のように透過イオン静止系へ変換できる。

$$\varepsilon_p = (\sqrt{\varepsilon_l} - \sqrt{\varepsilon_i})^2 \quad (2.4)$$

$$= \varepsilon_l + \varepsilon_i - 2\sqrt{\varepsilon_l\varepsilon_i} \quad (2.5)$$

このとき電子収量は実験室系での二重微分断面積 $\frac{d^2\sigma_l}{d\varepsilon_l d\Omega_l}$ とイオン静止系での二重微分断面積 $\frac{d^2\sigma_p}{d\varepsilon_p d\Omega_p}$ の以下のような関係を用いて変換できる [19]。

$$\frac{d^2\sigma_l}{d\varepsilon_l d\Omega_l} = \sqrt{\frac{\varepsilon_l}{\varepsilon_p}} \frac{d^2\sigma_p}{d\varepsilon_p d\Omega_p} \quad (2.6)$$

2.2 実験装置

実験は、茨城県那珂郡東海村にある日本原子力研究開発機構原子力科学研究所の 20-MV タンデム加速器で行った。加速器の概略図を図 2.1 に示す。C_n⁺ イオン ($n = 1, 2, 3$) は高電圧ターミナル内に設置された Electron Cyclotron Resonance (ECR) イオン源でベンゼンガスから生成された [20]。ECR イオン源から引き出されたイオンは電磁石によって 90 度偏向され、180 度偏向電磁石によって質量選別された。質量選別したイオンは加速管で単原子当たり 3.5 MeV まで加速され、再び 90 度偏向電磁石で偏向されて地下 1 階にある実験用散乱槽まで輸送された。イオンビームは 2 組のスリットによって 2 mm × 2 mm まで切られ、発散角は 0.2 mrad であった。

0 度電子分光装置の概略を図 2.2 に示す。加速部から輸送された 3.5 MeV/atom C_n⁺ イオン ($n = 1, 2, 3$) は炭素薄膜標的へ照射された。イオンと薄膜標的の衝突によってビーム進行方向 (0 度方向) へ放出された電子は、分光器初段 (セパレーター) で 90 度偏向され、45 度平行平板型電子分光器でエネルギー分析されたのち二次電子増倍管 (Channeltron) で検出された。標的上のビームスポットから見た分光器の入り口スリットの受容角は ±8 mrad であった。一方、標的を透過したイオンは分光器初段を直進し、Faraday cup で捕集された。照射したビームの総電荷量を Faraday cup により測定し、それによって電子エネルギースペクトルを規格化した。標的はアモルファスカーボン薄膜 (ACF-Metals, The Arizona Carbon Foil Co., Inc.) で、膜厚公称値 3.0, 3.1, 3.4, 4.8, 5.0, 6.9, 10.5, 19.5, 29.7 μg/cm² のものを用いた。実験時のチャンバー真空度は 2×10^{-7} torr 程度、実験時のビーム電流は 0.1 – 10 nA 程度であった。イオンビームの電流を 1/4 に変化させた場合も照射ビーム量当たりの電子エネルギースペクトルはよく一致し、照射イオンの密度による電子エネルギースペクトルの変化はみられなかった。

1 本の電子エネルギースペクトルを測定するのにかかった時間は convoy 電子で 30 分程度、薄膜を透過した照射イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子では最大 8 時間程度であった。ビームプロファイルの時間変化によって電子収量が変わった場合に備えるため、スペクトルの 1 回のスキャンは最大 40 分程度で、同じ条件のまま最低 3 回のスキャンを行った。

45 度平行平板型電子分光器による電子のエネルギー分析は、常に目的のエネルギーの

電子を 50 eV まで減速して行った。分光器のエネルギー分解能は測定する電子のエネルギーに比例するため、分析する電子のエネルギーを低くすることで分解能を高くすることができる。入り口スリットで電子を減速する際にレンズ効果がはたらき、測定するエネルギーに応じてスリットの透過率が変化するが、本実験では同じエネルギーのピークの収量比をとるため透過率の変化は打ち消される。使用した分光器の相対エネルギー分解能は 3.2% で、50 eV の電子を分析する場合の絶対エネルギー分解能は 1.6 eV である。

二次電子増倍管で検出した電子の数を Faraday cup で測定したビームの総電荷量で割ることで、照射ビーム量あたりの電子収量を測定した。Faraday cup で測定されるビームの総電荷量 Q は標的を透過した各イオンの電荷 q_i 、標的を透過したイオンの数 N を用いて以下のように書ける。

$$Q = \sum_i^N q_i \quad (2.7)$$

また標的薄膜を透過したイオンの平均電荷 \bar{q} は以下のようにあらわせる。

$$\bar{q} = \frac{Q}{N} = \frac{1}{N} \sum_i^N q_i \quad (2.8)$$

3.5 MeV C^+ を炭素薄膜標的に照射した場合、標的膜厚 $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下ではほぼ電荷平衡に達する。電荷平衡における C イオンの平均電荷は 3.74 である [13]。式 2.7 において、 C_2^+ 照射時には標的薄膜を透過するイオン数 N が C^+ 照射時の 2 倍になり、総電荷量 Q も約 2 倍になる。そのため、 Q で割った電子収量は照射イオンを構成する単原子当たりの電子収量になる。ただしクラスターイオン照射時には、標的を透過したイオンの電荷分布が同速度の単原子イオン照射時の電荷分布からずれる可能性がある。金子の計算 [10] によると、2 MeV/atom C_3 を膜厚 $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜へ照射した場合の透過イオンの平均電荷は C 原子照射の場合より 10% 程度抑制されうる。標的が厚くなってイオン間距離が広がるほど平均電荷におけるクラスター効果は弱くなり、膜厚 $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ で 1% 程度になる。これより本実験で電子収量の規格化に含まれる誤差は最大 10% 程度と考えられる。

2.3 0 度電子分光スペクトルの全体図

図 2.2 の電子分光装置を用い、3.5 MeV C^+ 単原子イオンを炭素薄膜標的へ照射して 0 度方向（ビーム進行方向）で測定した電子エネルギースペクトルを図 2.3 に示す。スペクトルは 160 eV 付近で鋭いピークを持ち、以降電子エネルギーが高くなるにしたがって電子収量が減少している。160 eV は入射イオンである 3.5 MeV C^+ と同速度の電子のエネルギーにあたる。このようなイオンと同速度でイオンに伴走する電子は convoy 電子と呼ばれ、0 度付近の狭い立体角にしか放出されない。Convoy 電子エネルギーの 4 倍にあたる 640 eV は、3.5 MeV C 原子が静止した電子と弾性衝突した場合に電子が得る最大の運動エネルギーにあたる。この付近でゆるやかにスペクトルの負の傾きが強くなっているように見える。また、750 eV 付近に小さなピークがある。これは照射イ

オン静止系に換算すると約 230 eV にあたり，薄膜標的を透過したイオンから 0 度方向へ放出された KLL Auger 電子によるピークである．本論文の結論には直接関係しないが，透過イオンから放出された KLL Auger 電子についての測定結果と考察は付録 A に示した．

図 2.3 の convoy 電子ピーク付近をさらに細かく測定した結果を図 2.4 に示す．Convoy 電子ピークの両裾 (100–150 eV, 170–230 eV) に，複数のピークがみえる．これらは標的を透過したイオンの Rydberg 状態から Auger 遷移によって放出された電子によるピークで，イオンから 180 度方向へ放出された電子が convoy 電子ピークの左肩，0 度方向へ放出された電子が右肩にみえている．

本研究では convoy 電子収量と，透過イオンの Rydberg 状態から放出された Auger 電子の収量におけるクラスター効果を調べた．

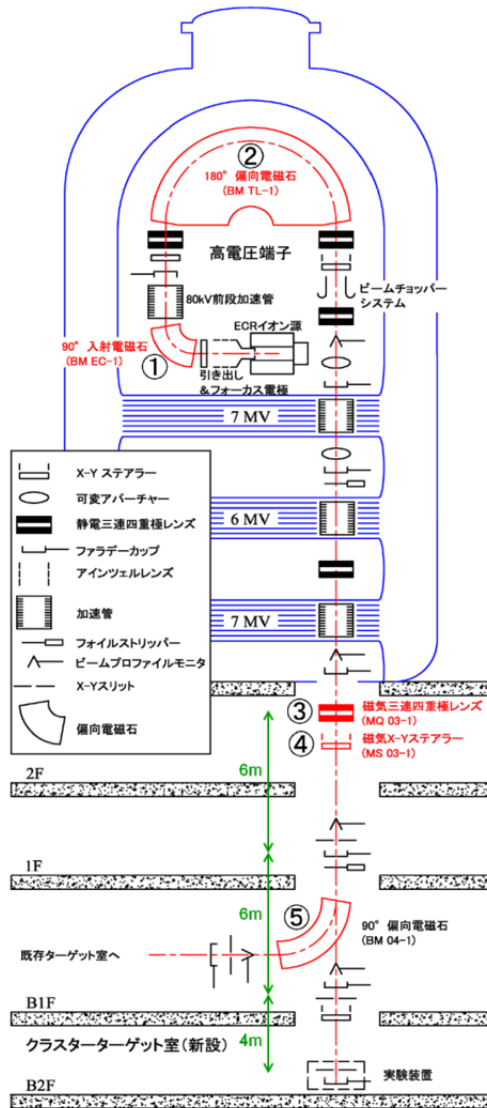


図 2.1 20-MV タンデム加速器の概略図. C_n^+ イオン ($n = 1, 2, 3$) は高電圧端子内に設置された Electron Cyclotron Resonance (ECR) イオン源でベンゼンガスから生成された [20]. ECR イオン源から引き出されたイオンは電磁石 (①) によって 90 度偏向され, 180 度偏向電磁石 (②) によって質量選別された. 質量選別したイオンは加速管で単原子当たり 3.5 MeV まで加速され, 再び 90 度偏向電磁石 (⑤) で偏向されて地下 1 階にある実験用散乱槽まで輸送された.

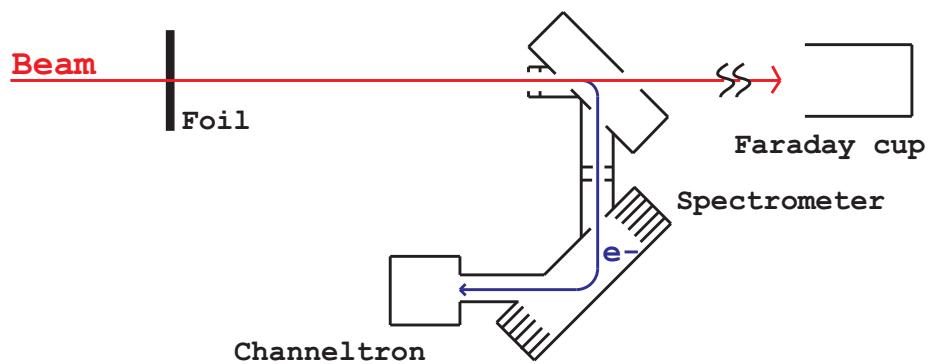


図 2.2 0 度電子分光装置の概略図. 加速部から輸送された $3.5 \text{ MeV/atom } C_n^+$ イオン ($n = 1, 2, 3$) は炭素薄膜標的へ照射された. イオンと標的の衝突によってビーム進行方向 (0 度方向) へ放出された電子は, 分光器初段 (セパレーター) で 90 度偏向され, 45 度平行平板型電子分光器でエネルギー分析されたのち電子増倍管 (Channeltron) で検出された. 標的から見た分光器の入り口スリットの受容角は $\pm 8 \text{ mrad}$ であった. 一方, 標的を透過したイオンは分光器の初段を直進し, Faraday cup で捕集された. 標的はアモルファスカーボン薄膜 (ACF-Metals, The Arizona Carbon Foil Co., Inc.) で, 膜厚公称値 $3.0, 3.1, 3.4, 4.8, 5.0, 6.9, 10.5, 19.5, 29.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のものを用いた.

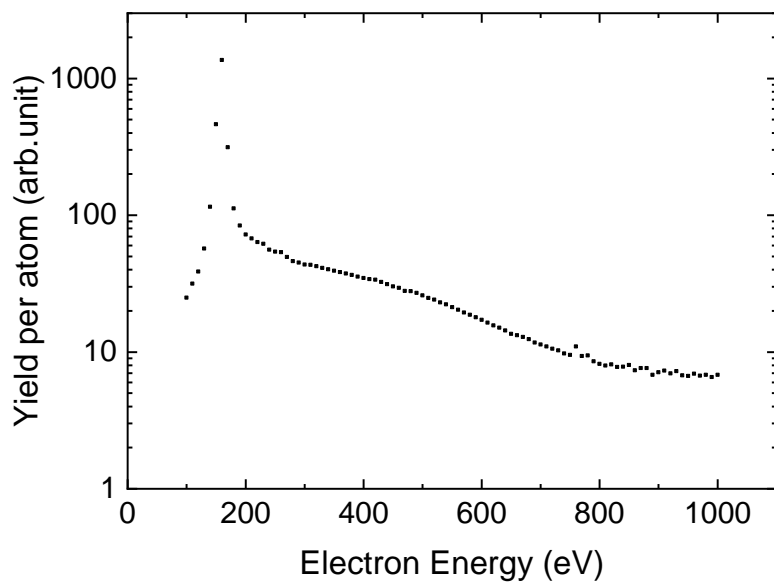


図 2.3 3.5 MeV/atom C^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際に 0 度方向で測定した電子エネルギースペクトルの全体図の例。横軸は実験室系における電子のエネルギー、縦軸は電子収量である。縦軸の電子収量是对数スケールになっている。160 eV 付近に convoy 電子に起因する鋭いピークがある。また、750 eV 付近に照射イオンから 0 度方向へ放出された KLL Auger 電子による小さなピークが見えている。

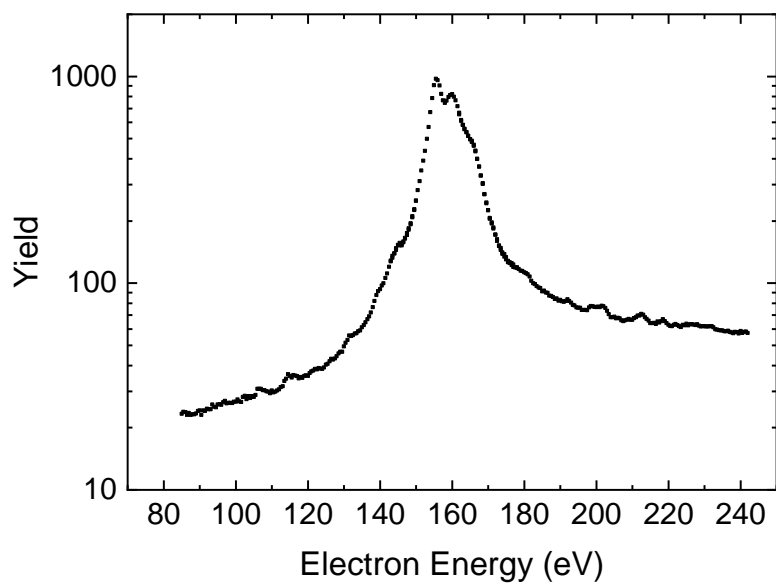


図 2.4 3.5 MeV/atom C^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際に 0 度方向で測定した convoy 電子ピーク付近のスペクトルの例。横軸は実験室系における電子のエネルギー，縦軸は電子収量である。縦軸の電子収量は対数スケールになっている。約 156 eV に convoy 電子に起因するピークがある。Convoy 電子ピークの左肩 (100 eV–150 eV) と右肩 (170 eV–230 eV) にそれぞれ Rydberg 状態の透過イオンから 180 度方向，0 度方向へ放出された Auger 電子のピークが複数見えている。

第 3 章

Convoy 電子

この章では、高速の C_n^+ ($n = 1 - 3$) イオンを様々な厚さの炭素薄膜標的へ照射し、convoy 電子収量を測定した結果について述べる。

3.1 Convoy 電子収量の標的膜厚依存性

図 3.1 に 3.5 MeV/atom C_3^+ 照射時の convoy 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトルを示す。標的膜厚 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の際の結果がそれぞれ示してある。標的膜厚 4.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の場合の convoy 電子ピークに注目すると、160 eV 付近に頂点をもつ鋭いピークになっている。また、convoy 電子ピークの右肩 (165–175 eV 付近) にこぶのような構造が見える。これは分光器初段へイオンが入射した際、分光器初段の電場によってイオンの high Rydberg 状態に束縛されていた電子がイオン化 (Field ionization) された成分と考えられる。

標的膜厚 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のスペクトルを比較すると、標的膜厚が厚くなるにしたがって convoy 電子ピークの位置が低エネルギー側へシフトしている。標的膜厚が厚くなるほど標的内での照射イオンのエネルギー損失が大きくなるため、それに伴って標的を透過したイオンに伴走する convoy 電子のエネルギーも下がったと考えられる。3.5 MeV C を炭素薄膜標的 (膜厚 d [$\mu\text{g}/\text{cm}^2$]) へ照射した際に、標的入射時と脱出時のイオンのエネルギーの差 (エネルギー損失) ΔE は以下のように計算できる。

$$\Delta E = \int_0^d \left(\frac{dE}{dx} \right)_e dx \quad (3.1)$$

ここで $(dE/dx)_e$ は電子的阻止能、 x はイオンが固体内を進んだ距離である。膜厚 d が十分薄ければエネルギー損失 ΔE はイオンのエネルギー E に対して十分小さく、 $(dE/dx)_e$ を定数と考えることが出来るので、以下のように書き換えられる。

$$\Delta E = d \cdot \left(\frac{dE}{dx} \right)_e \quad (3.2)$$

SRIM 2013 によると 3.5 MeV C を C 標的へ照射した際の $(dE/dx)_e$ は 7.37 keV/ $(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ である。これより標的を透過したイオンと等速の電子のエネルギー ε_i は照射イオンの単原子あたりのエネルギー E 、電子質量 m_e 、イオンの質量 M を用いて

以下のように計算できる.

$$\varepsilon_i = \frac{m_e}{M}(E - \Delta E) \quad (3.3)$$

標的膜厚の公称値 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ を用いて標的を透過したイオンと等速の電子のエネルギーを計算するとそれぞれ 158 eV, 156 eV, 150 eV である. 図 3.1 中のピーク位置とほぼ一致しており, 標的膜厚ごとの convoy 電子ピークのエネルギーのずれの大きさは妥当といえる. また図 3.1 において, 標的膜厚が 4.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (実線) の時に比べ, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ (破線, 点線) の時の方がピークの面積が減少している.

Convoy 電子収量の変化をより定量的にみるため, 各 convoy 電子ピークを積分し, 標的膜厚の関数としてプロットする. ここで convoy 電子と高励起の Rydberg 電子は生成過程が同じと考えられるので, 解析においては Field ionization に由来する右肩のこぶを分けず, convoy 電子とまとめてピークを積分した. 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオン照射時に測定した convoy 電子収量の標的膜厚依存性を図 3.2 に示す. 縦軸は単原子あたりの convoy 電子収量となるよう規格化されている. もしクラスター効果がなく C_n^+ イオン照射時の convoy 電子収量が C^+ 照射時の convoy 電子収量の n 倍になるなら, C_2^+ , C_3^+ イオン照射時のプロットは C^+ 照射時のプロットに重なる. また上辺の軸に標的膜厚の目安として, 標的密度をグラファイトの密度 2.260 g/cm^3 とした場合の標的の厚さを nm で示した.

測定を行った 3.0 – 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的膜厚の範囲すべてにわたって, 単原子あたりの convoy 電子収量は C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオン照射の順に増加した. この結果は, 0.5 MeV/atom C_n^+ 照射で単原子あたりの convoy 電子収量が照射したイオンを構成する原子数に比例したという報告 [15] と定性的に一致している. C^+ 単原子イオン照射時は, 標的膜厚 3.0 – 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の範囲でほぼ convoy 電子収量が一定だった. これより C^+ 照射時には標的膜厚 3.0 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下でイオンは電荷平衡に達していると考えられる. 一方 C_2^+ , C_3^+ クラスターイオン照射時には, 4.8 – 10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的膜厚の範囲で標的が厚いほど convoy 電子収量が減少した. これは入射イオンが初期にもっていた電子を, イオンが固体原子との衝突を繰り返して電荷平衡に達する過程で失う効果 (Electron Loss) を見ていると考えられる. C^+ 照射時には透過イオンは標的膜厚 3.0 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下で電荷平衡に達しているにも関わらず, C_2^+ , C_3^+ 照射時には膜厚 10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的まで Loss electron の影響が見えた. 標的膜厚 10.5 – 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の範囲では, C_2^+ , C_3^+ 照射時の convoy 電子収量も膜厚に関わらず概ね一定だった.

ここで C_2^+ イオン照射において, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の炭素薄膜標的を脱出する際のイオン間の距離を見積もる. 3.5 MeV/atom C_2^+ が薄膜標的へ入射した直後に平均平衡電荷 3.74[13] をもつ単原子イオンへ解離し, その後イオン間のクーロン反発で広がりながら薄膜内を進んでいくと仮定して, 標的膜厚とイオン間距離の関係を求めた結果を図 3.3 に示す. 計算には式 1.2 を用いた. 図 3.3 より, C_2^+ イオン照射において膜厚 10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的を脱出するときのイオン間距離はそれぞれ約 4 Å, 12 Å である. 標的膜厚 10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の間でイオン間距離が 3 倍程度広がっているにもかかわらず, C_2^+ , C_3^+ 照射時の convoy 電子収量は変化せずクラスター効果が残り続けていた.

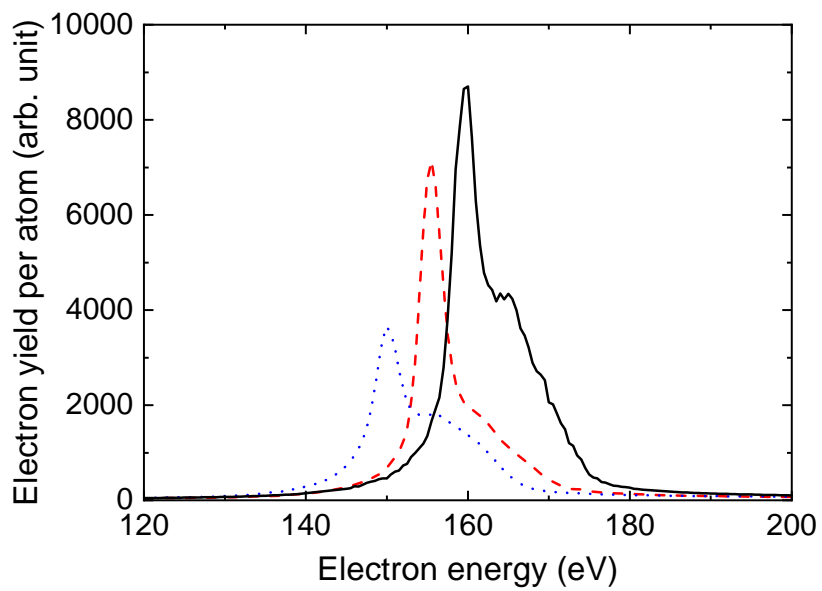


図 3.1 3.5 MeV/atom C_3^+ 照射時の convoy 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル。標的膜厚 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の際の結果がそれぞれ実線, 破線, 点線で示されている。

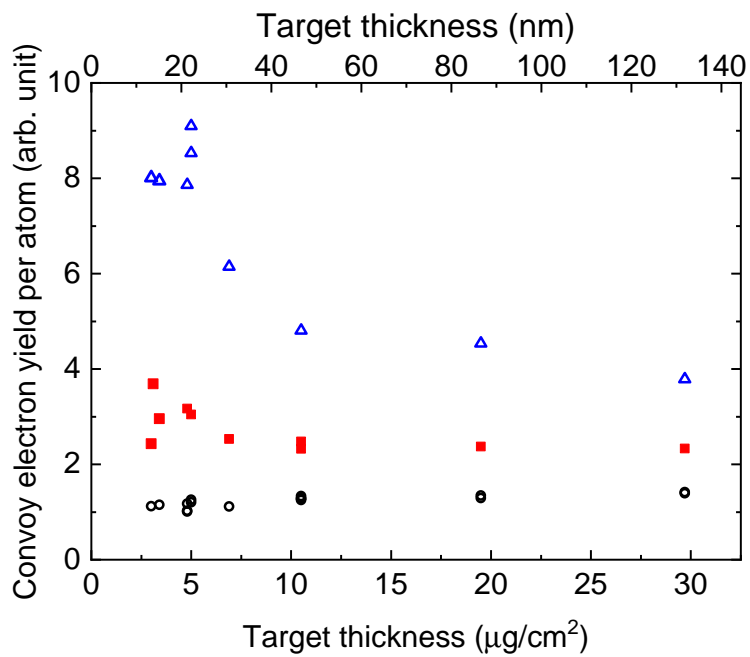


図 3.2 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオン照射時の convoy 電子収量の標的膜厚依存性. 縦軸は単原子あたりの convoy 電子収量となるように規格化されている. 上辺の軸に標的膜厚の目安として, 標的密度をグラファイトの密度 2.260 g/cm^3 とした場合の標的の厚さを長さで示した. C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオン照射時の convoy 電子収量をそれぞれ丸, 四角, 三角で示した.

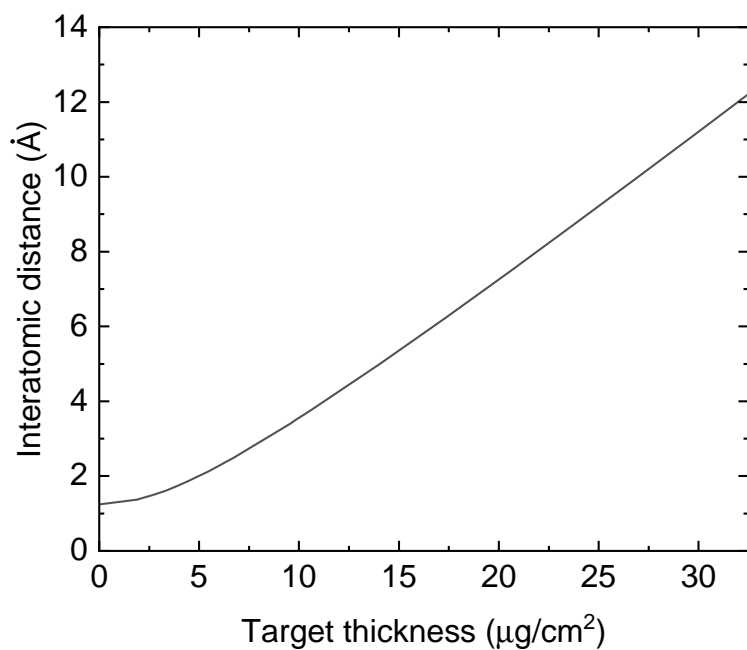


図 3.3 3.5 MeV/atom C_2^+ 二原子分子イオンを炭素薄膜標的へ照射した際の標的膜厚と標的脱出時のイオン間距離の関係. C_2^+ イオンは標的入射直後に平均平衡電荷 3.74[13] をもつ 2 個のイオンへ解離し, その後 2 個のイオン間のクーロン反発によってイオン間の距離が広がっていくと仮定している.

第 4 章

透過イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子

今章では 3.5 MeV/atom C⁺, C₂⁺ イオンを薄膜標的へ照射した際に測定された, 透過イオンの Rydberg 状態から Auger 遷移によって放出された電子の収量におけるクスター効果について述べる.

透過イオンの Rydberg 状態から Auger 遷移によって放出された電子は, 図 2.4 に見られるように convoy 電子ピークの両肩に小さな複数のピークとして測定される. 実験室系のスペクトルではイオンから放出された Auger 電子のエネルギーがわかりにくいので, 電子エネルギースペクトルをイオン静止系へ変換して解析を行った. 図 4.1 に 3.5 MeV C⁺ イオンを 10.5 μg/cm² 厚の炭素薄膜へ照射した際に, 0 度方向で測定した Auger 電子ピークをイオン静止系へ変換した結果を示す. 標的を透過したイオンから 0 度方向と 180 度方向へ放出された電子のスペクトルがそれぞれ示されている. イオン静止系で 1 eV から 8 eV まで複数のピークがみえており, 0 度方向と 180 度方向のスペクトル上のピーク位置はよく一致している. ただし, 180 度方向のスペクトルの方がややピークが弱くみえる. 図 4.1 中には量子欠損理論 [21] を用いて計算した Auger 電子エネルギー E_{nl} を合わせて示した. Auger 電子エネルギーの計算には次の式 4.1 を用いた.

$$E_{nl} = \Delta E - \frac{Q^2 R}{(n - \mu_l)^2} \quad (4.1)$$

上式の n は Auger 電子が放出される Rydberg 状態の主量子数, Q は Rydberg 電子からみたイオンの核電荷, μ_l は量子欠損 [21], R は Rydberg エネルギー (13.6 eV) である. ΔE は $2s$ 軌道と $2p$ 軌道のエネルギー準位の差である [22]. 図 4.1 より, Auger 遷移 $1s^2 2p(^2P)nl \rightarrow 1s^2 2s(^2S_{\frac{1}{2}}) + \epsilon l'$ の $n = 5, 6, 7$ が独立なピークとして観測され, $n = 8$ から series limit (8.0 eV) までのピークが重なった一つの幅広なピークとして観測された. また $1s 2p(^3P)nl \rightarrow 1s 2s(^3S_1) + \epsilon l'$ の $n = 7, 8$ が独立なピークとして見えた. ここで $1s^2 2p(^2P)nl \rightarrow 1s^2 2s(^2S_{\frac{1}{2}}) + \epsilon l'$ は, $1s$ 軌道に電子が 2 個, $2p$ 軌道に電子が 1 個, 外殻の軌道 nl (主量子数 n , 方位量子数 l) に電子が 1 個入った初期状態から, $2p$ 電子が $2s$ 軌道へ落ち, そのエネルギー差分を外殻 nl に入っていた電子が受け取ってエネルギー ϵ , 角運動量 l' の自由電子として放出される遷移を表している. 同様に $1s 2p(^3P)nl \rightarrow 1s 2s(^3S_1) + \epsilon l'$ は, $1s$ 軌道に電子が 1 個, $2p$ 軌道に電子が 1 個, 外

殻の軌道 nl に電子が 1 個入った初期状態から、 $2p$ 電子が $2s$ 軌道へ落ち、そのエネルギー差分外殻 nl に入っていた電子が受け取ってエネルギー ε 、角運動量 l' の自由電子として放出される遷移を表している。これらの遷移における L 殻内での $2p$ 軌道から $2s$ 軌道への遷移のように、同じ殻内での電子遷移により外殻の電子が放出されるような Auger 遷移を特に Coster-Kronig 遷移と呼ぶ。

照射したイオンや標的膜厚によってバックグラウンドが変わるため、図 4.1 のような電子エネルギースペクトルのままでは異なる条件のスペクトルを比較するには適さない。そこで、電子エネルギースペクトルから Auger 電子ピーク以外をバックグラウンドとして差し引く操作を行った。Auger 電子のエネルギーの計算値をもとに、Auger 電子が存在しないエネルギー領域で測定した電子エネルギースペクトルと重なるような滑らかな曲線をスプライン曲線を用いて引き、バックグラウンドとした。バックグラウンドには二次電子、convoy 電子、分光器の初段でイオンの high Rydberg 状態が Field ionization されたことにより放出された電子が含まれる。

まず、 $3.5 \text{ MeV/atom C}_2^+$ イオンを膜厚 $10.5, 29.7 \mu\text{g/cm}^2$ の炭素薄膜標的へ照射した際、薄膜標的を透過したイオンの Rydberg 状態から放出された Auger 電子の電子エネルギースペクトルを図 4.2 に示す。膜厚 $10.5, 29.7 \mu\text{g/cm}^2$ の薄膜に対する電子エネルギースペクトルはほぼ重なっており、イオンは $10.5 \mu\text{g/cm}^2$ 以下の膜厚で電荷平衡に達していることがわかる。

次に膜厚 $10.5 \mu\text{g/cm}^2$ の標的について、 C^+ 、 C_2^+ 照射時の電子エネルギースペクトルをともにプロットした結果を図 4.3 に示す。縦軸の電子収量は単原子あたりの収量となるよう規格化した。もしクラスター効果がなく、 C_2^+ 照射時の Auger 電子収量が C^+ 照射時の 2 倍になっているなら、 C_2^+ 照射時のスペクトルは C^+ 照射時のスペクトルに重なる。図 4.3 から、 C_2^+ 照射時のスペクトルにも単原子イオンの Rydberg 状態 $1s^2 2p(^2\text{P})nl$ ($n \geq 5$) と $1s^2 2p(^3\text{P})nl$ ($n = 7, 8$) からの Auger 遷移によって放出された電子によるピークが現れていることがわかる。また C_2^+ 照射時の方が C^+ 照射時の電子エネルギースペクトルよりも、ややピークが幅広になっているように見える。これはイオン間のクーロン反発によりイオンのエネルギー幅が広がる効果 (Kinetic Energy Release) の影響である。詳しくは付録 B に示した。

ここで標的脱出時のイオン間距離と、Auger 電子として放出された Rydberg 電子の軌道半径を比較してみる。 3.5 MeV C_2 が標的入射直後に平均平衡電荷 $3.74[13]$ の単原子イオンへ解離し、その後イオン間のクーロン反発で広がりながら進んでいくと仮定すると、 $10.5 \mu\text{g/cm}^2, 29.7 \mu\text{g/cm}^2$ の標的脱出時のイオン間距離は約 $4 \text{ \AA}, 12 \text{ \AA}$ である。(図 3.3 参照) 一方、Rydberg 状態 $1s^2 2p5l$ の軌道半径は $l = 0$ のとき 6.61 \AA 、 $l = 4$ のとき 4.85 \AA である。同様に、 $1s^2 2p6l$ の軌道半径は $l = 0$ のとき 9.52 \AA 、 $l = 5$ のとき 6.88 \AA 。 $1s^2 2p7l$ の軌道半径は $l = 0$ のとき 13.0 \AA 、 $l = 6$ のとき 9.26 \AA である。つまり本実験の条件では、標的脱出時のイオン間距離と観測された Rydberg 状態の軌道半径は同程度の大きさを持つ。Rydberg 電子は固体内や固体表面脱出直後では 2 個のイオンからの影響を同時に受けていると考えられる。表面脱出後にさらにイオン間距離が広がるにつれて単原子イオンの Rydberg 状態へと連続的に遷移していき、自動イオン化が起こる時点においては単原子イオンの Rydberg 状態とみなせるほどイオン間の距離

が離れているものと思われる。

また図 4.3 から, $1s^2 2p(^2P)nl \rightarrow 1s^2 2s(^2S_{1/2}) + \epsilon l'$ ($n = 5, 6, 7$) 遷移からの Auger 電子ピークでは, C_2^+ 照射時の Auger 電子収量が C^+ 照射時の Auger 電子収量に比べて減少していることが読み取れる。より定性的に C_2^+ 照射時と C^+ 照射時の Auger 電子収量を比較するため, 初期状態 $1s^2 2p(^2P)nl$ ($n = 5, 6, 7, n \geq 8$) から放出された Auger 電子のピークをそれぞれ積分して Auger 電子収量の C^+ 照射時に対する比 $Y(C_2^+)/2Y(C^+)$ を求め, Auger 電子が放出された Rydberg 状態の主量子数 n に対してプロットした結果を図 4.4 に示す。膜厚 $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ と $29.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の薄膜に対する結果がそれぞれ示されている。電子収量は照射した単原子あたりに規格化されているため, もし単原子あたりの Auger 電子収量が C^+ 照射時と C_2^+ 照射時で同じなら, プロットは $Y(C_2^+)/2Y(C^+) = 1$ の線上にのる。図 4.4 より, $n = 5, 6, 7$ の Rydberg 状態からの Auger 電子ピークにおける $Y(C_2^+)/2Y(C^+)$ は 0.2 から 0.6 程度で, C_2^+ 照射時は C^+ 照射時に比べて単原子あたりの Auger 電子収量が減少した。また, Rydberg 状態の主量子数 n が大きいほど $Y(C_2^+)/2Y(C^+)$ の値が増加する傾向が見られた。この傾向は主量子数 $n \rightarrow \infty$ の場合に相当する convoy 電子において, クラスターイオン照射時に単原子イオン照射時に比べて電子収量が増大する結果と定性的に一致する。また $Y(C_2^+)/2Y(C^+)$ は標的膜厚 $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ と $29.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ でほぼ変化せず, 膜厚 $29.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の薄膜標的でもクラスター効果が残り続けた。

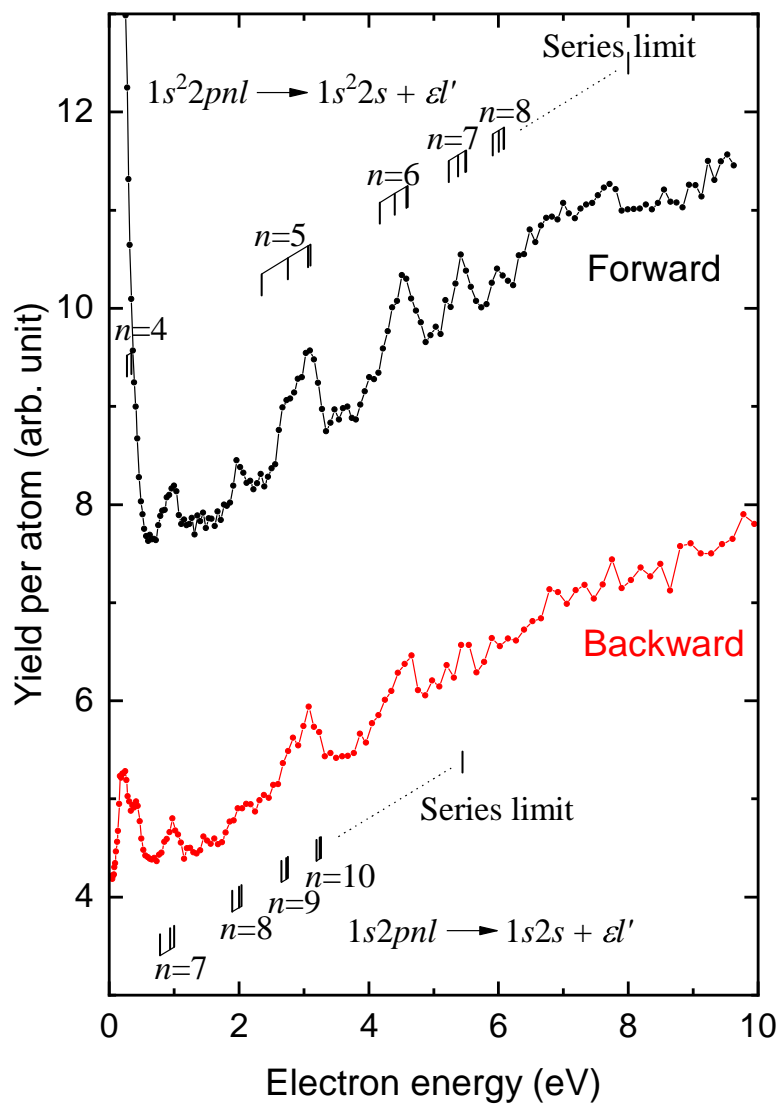


図 4.1 3.5 MeV C^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際、透過イオンの Rydberg 状態から放出された Auger 電子のエネルギースペクトルをイオン静止系に直したものの、透過イオンから 0 度方向 (forward) と 180 度方向 (backward) へ放出された電子のエネルギースペクトルがそれぞれ示されている。

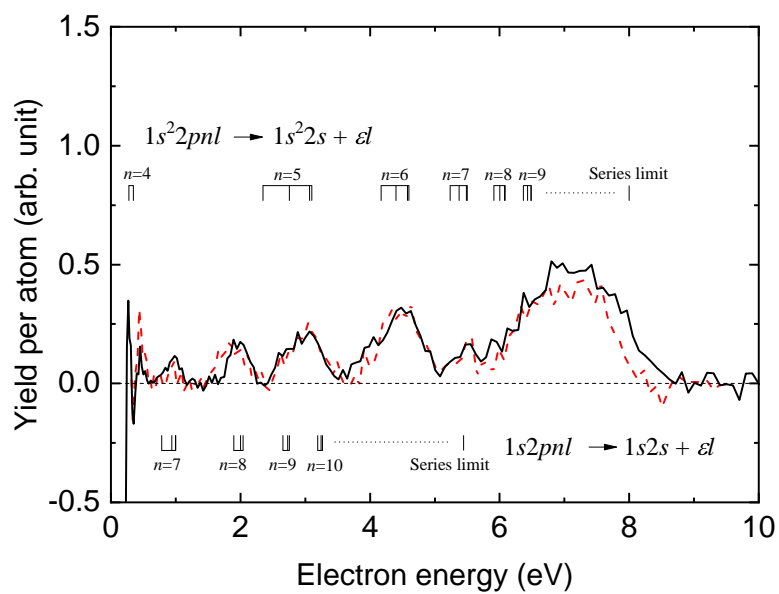


図 4.2 3.5 MeV/atom C_2^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際、透過イオンの Rydberg 状態から 0 度方向へ放出された Auger 電子のエネルギースペクトル (イオン静止系)。横軸はイオン静止系における電子エネルギー、縦軸は単原子当たりの電子収量である。膜厚 10.5, $29.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的に対するスペクトルがそれぞれ実線、破線で示されている。Auger 電子以外のバックグラウンドは差し引かれている。

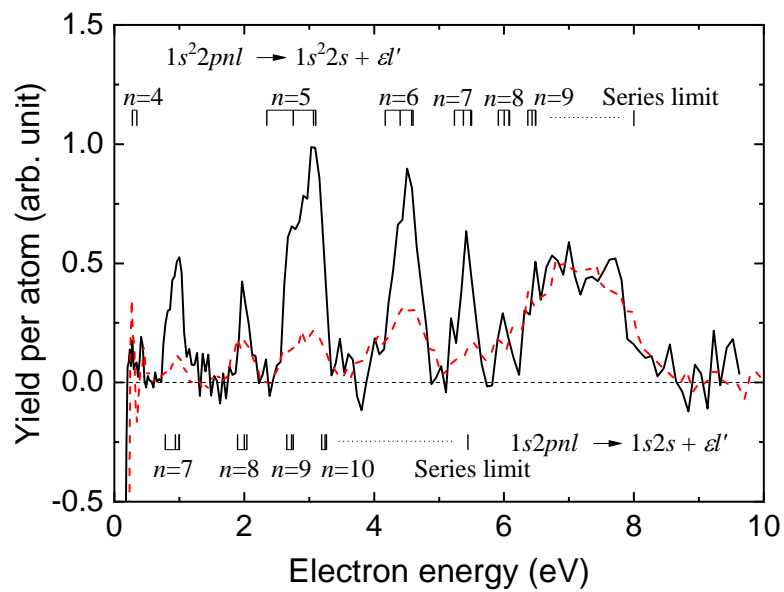


図 4.3 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ イオンを膜厚 $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の標的へ照射した際、透過イオンの Rydberg 状態から 0 度方向へ放出された Auger 電子のエネルギースペクトル (イオン静止系)。 C^+ , C_2^+ 照射時のスペクトルをそれぞれ実線、破線で示した。縦軸は単原子当たりの電子収量となるように規格化されている。Auger 電子以外のバックグラウンドは差し引かれている。

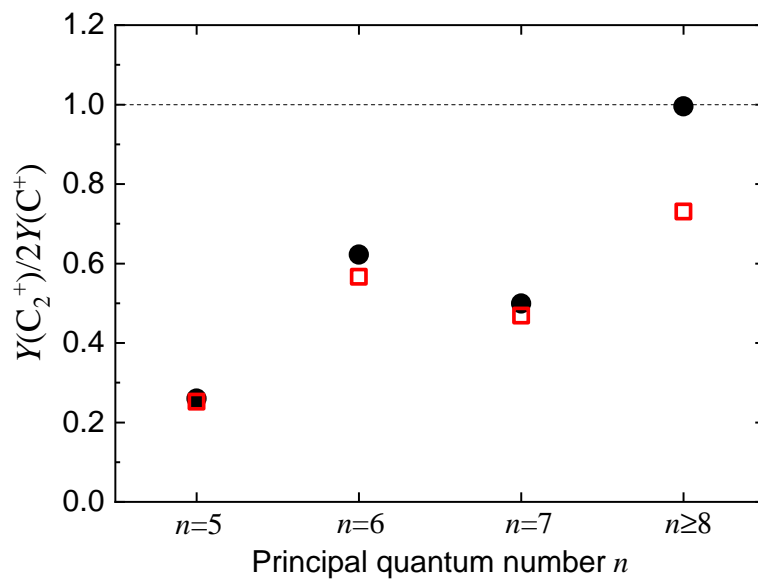


図 4.4 C_2^+ 照射時の $1s^2 2pnl \rightarrow 1s^2 2s + \epsilon l'$ 遷移による Auger 電子収量の C^+ 照射時に対する比 $Y(\text{C}_2^+)/2Y(\text{C}^+)$ を, Auger 電子が放出された Rydberg 状態の主量子数 n に対してプロットした図. 単原子あたりの Auger 電子収量が C^+ 照射時と C_2^+ 照射時で同じなら, プロットは $Y(\text{C}_2^+)/2Y(\text{C}^+) = 1$ の線上にのる. 標的膜厚 $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ と $29.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の結果がそれぞれ丸と四角で示されている.

第 5 章

考察

この章では 3 章で述べた convoy 電子収量についての結果と 4 章で述べた透過イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子収量についての結果を踏まえ、高速クラスターイオンを固体へ照射した際に convoy 電子や透過イオンの Rydberg 状態がどのような散乱電子の輸送過程を経て生成されるのかを考察する。

5.1 Convoy 電子収量の標的膜厚依存性の減衰関数による模式化

Convoy 電子や固体薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態は、山崎らが提唱した Free electron transfer to the projectile continuum (FETC) process によって生成されると考えられている [23]。これは以下のような過程である。固体内を走るイオンは固体原子と非弾性衝突し、散乱電子を生成する。最終的にイオンが表面の仕事関数を越えて固体を脱出するとき、イオンの周囲に存在する散乱電子のうちイオンに対する相対エネルギーの小さい電子がイオンの低エネルギーの連続状態や高励起の離散状態へ捕獲される。別の言い方をすれば、遷移先のイオンの連続状態や高励起の離散状態と十分重なる波動関数をもつ散乱電子がそれらの状態へ捕獲される。遷移先が低エネルギーの連続状態であれば convoy 電子となり、遷移先が高励起の離散状態であれば Rydberg 電子となる。イオンが固体を脱出する時に散乱電子がイオンの連続状態や高励起の離散状態へ捕獲される過程には、イオンが表面の仕事関数を越える際のポテンシャルの変化が関わっていると考えられている。

イオンが固体を脱出する際に convoy 電子やイオンの Rydberg 電子になるようなイオンに対する相対エネルギーの小さい散乱電子は、固体内でイオンに対する相対エネルギーが小さい、イオンに伴走して進む電子から生成されると考えられる。そこでイオンに伴走する電子の数がイオンが固体内を進む距離に対してどのように変化するかを模式化する。固体内でイオンに伴走する電子の数を y とおく。イオンに伴走する電子の数の変化量 dy は、イオンが微小距離 dx 進む間に固体原子との散乱によって失われるイオンに伴走する電子の数と、イオンと固体原子との散乱によって生成されるイオンに伴走する電子の数の和で表せると考える。

$$dy = -\frac{y}{\lambda}dx + \alpha dx \quad (5.1)$$

λ はイオンに伴走する電子の減衰長, α はイオンが単位距離進む間に散乱によって生成されるイオンに伴走する電子の数である. 固体薄膜入射時 ($x = 0$) における y の値を y_0 と置くと, この微分方程式の解は下式のようになる.

$$y = (y_0 - \alpha\lambda)e^{-x/\lambda} + \alpha\lambda \quad (5.2)$$

これは切片 y_0 , 減衰長 λ で定数 $\alpha\lambda$ に漸近する指数関数的減衰曲線である. イオンに伴走する電子の一部が固体表面からの脱出時に convoy 電子になるとすると, 固体外で測定される convoy 電子収量 Y_c は X を固体薄膜の膜厚として, 以下のようにあらわせる.

$$Y_c = y(X) = (y_0 - \alpha\lambda)e^{-X/\lambda} + \alpha\lambda \quad (5.3)$$

式 5.3 を用いて, 本実験で測定した convoy 電子収量の標的膜厚依存性をフィッティングしてみる. 図 5.1 に 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際に測定した convoy 電子収量の標的膜厚依存性を示した. プロットは図 3.2 とまったく同じデータである. 図 5.1 上に C_3^+ 照射時の convoy 電子収量の標的膜厚依存性 (標的膜厚 4.8 – 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) を式 5.3 の y_0 , λ , α を自由なパラメータとして最小二乗法でフィッティングした結果を示す. フィッティングの結果は $\alpha\lambda = 4.12 \pm 0.44$, $y_0 - \alpha\lambda = 22.45 \pm 14.07$, $\lambda = 3.00 \pm 1.19 [\mu\text{g}/\text{cm}^2]$ であった. 減衰長 $\lambda = 3 [\mu\text{g}/\text{cm}^2]$ は長さにして 150 Å 程度になる. 固体内における 160 eV の自由電子の平均自由行程が約 7 Å であるのに比べると, C_3^+ 照射時の convoy 電子の減衰長ははるかに長いことがわかる.

C_3^+ 照射時の convoy 電子収量に対するフィッティング結果をもとに, y_0 , λ , α に適当な照射イオン依存性を仮定して C^+ , C_2^+ 照射時の convoy 電子収量を再現することを考える. 図 5.1 より標的膜厚 10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下の領域において, C^+ イオン照射時はほぼ convoy 電子収量が一定であるのに対し, C_2^+ , C_3^+ イオン照射時には標的が厚いほど convoy 電子収量が減少している. つまり C^+ イオン照射時より C_2^+ , C_3^+ イオン照射時の方が convoy 電子収量の減衰長が長くなっている. そこで 0.5 MeV/atom C_n^+ を炭素薄膜標的へ照射した実験で単原子あたりの convoy 電子収量が照射イオンの構成原子数 n に比例したという結果 [15] を踏まえて, 式 5.3 の減衰長 λ は照射イオンの構成原子数 n に比例すると仮定する. 電子的阻止能におけるクラスター効果は標的膜厚 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 以下で消えていると考えられるので, イオンが単位距離進む間に生成されるイオンに伴走する電子の数 α は定数とおく. 薄膜標的入射時 ($x = 0$) における y の値 y_0 については, 実験結果に合うように照射イオンの構成原子数 n の 2 乗に比例するとおいた.

照射イオンを構成する原子の数 n に対して $\lambda(n) \propto n$; $\alpha = \text{const.}$; $y_0(n) \propto n^2$ とおき, C_3^+ 照射時のプロットに対する減衰曲線のフィッティング結果から C^+ , C_2^+ 照射時のプロットに対応する曲線を引いた結果を, 図 5.1 中に示した. C^+ , C_2^+ 照射時の convoy 電子収量の標的膜厚依存性をおおむね再現できた. $y_0(n) \propto n^2$ とおくことにはあまり根拠がないが, 図 5.1 の実験結果のプロットにおいて C^+ 照射時における convoy 電子収量は測定した範囲の標的膜厚に対してほぼ一定だったのに対し, C_2^+ , C_3^+ 照射時における convoy 電子収量は標的膜厚が厚くなるにしたがって指数関数的に減衰していることから, C_2^+ , C_3^+ 照射時のイオンに伴走する電子の減衰長 λ が C^+ 照射時に比べ

て長くなっていることはいえる。同時にイオンに伴走する電子の減衰長 λ が C^+ 照射, C_2^+ 照射, C_3^+ 照射の順に長くなると仮定することで, 厚い標的膜厚で convoy 電子収量が収束する値 $\alpha\lambda$ が C^+ 照射, C_2^+ 照射, C_3^+ 照射の順に大きくなっている結果も再現することができた。

5.2 イオンに伴走する電子の減衰長におけるクラスター効果

測定した convoy 電子収量の標的膜厚依存性から, クラスターイオン照射時には固体内でイオンに伴走する電子の減衰長が単原子照射時に比べて長くなっていることがわかった。そこでクラスターイオン照射時に固体内でイオンに伴走する電子の減衰長が伸びるような物理過程を考える。

Convoy 電子の固体内での輸送過程について, Burgdörfer によって提唱された輸送モデルがある [24]。固体内において, イオンに対する相対エネルギーが小さくイオンに伴走して進む電子を考える。これらのイオンに伴走する電子は, 固体原子との遠距離衝突による小さいエネルギー遷移 (< 1 eV 程度) でイオンの Rydberg 状態へ遷移できる。Rydberg 状態へ入った電子は再びイオン化するまでの間イオンに伴走し続ける。照射イオンの Rydberg 状態への捕獲とイオン化を繰り返すことにより, イオンに伴走する電子の減衰長は同速度の自由電子よりも長くなると考えられる。

クラスターイオン照射の場合は, 複数のイオンが固体内の狭い領域に照射される。Rydberg 状態の軌道半径に比べて狭い領域に複数のイオンが照射されることによって Rydberg 状態が複数のイオンによる束縛状態になり, 単原子イオン照射の場合よりもイオンに伴走する電子の減衰長が伸びたと解釈することができる。極端な例を挙げると, イオンに伴走する電子から複数のイオンまでの距離に比べてイオン間距離が十分に短ければ, 電子から見て複数のイオンはそれらの電荷を足し合わせた電荷をもつ 1 個のイオンに見えるだろう。イオンの見かけの電荷が大きくなることによりイオンに伴走する電子の減衰長が伸びると考えられる。

この解釈が正しいなら同速度で異なる電荷の単原子イオンが固体内を進む場合にも, イオンの電荷が大きいほど convoy 電子収量が増える傾向がみられるはずである。図 5.2 は小川らによって測定された 1 MeV/u H^+ , He^{2+} , Li^{3+} イオンを炭素薄膜へ照射した際の 0 度方向の電子エネルギースペクトルである [25]。縦軸の電子収量はイオン-固体原子衝突の断面積の因子 (核電荷の 2 乗) で規格化されている。Binary collision のピークはすべてのイオン種でよく一致しているが, convoy 電子ピークは H^+ , He^{2+} , Li^{3+} 照射の順で収量が増加している。散乱電子の生成量がイオンの電荷の二乗に比例する効果は既に規格化されているため, H^+ , He^{2+} , Li^{3+} 照射時の convoy 電子収量の違いはイオンに伴走する電子の固体内での輸送過程か, 固体表面からの脱出時に convoy 電子が生成される過程のいずれかに起因すると考えられる。この結果は固体内を進むイオンの電荷が大きいほど convoy 電子の減衰長が伸びるといふ仮説を支持している。

また, 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射し, 薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量を測定した結果, C_2^+ 照射時にお

ける Auger 電子収量が C^+ 照射時に比べて減少する効果がみられた。さらに C_2^+ 照射時における Auger 電子収量の C^+ 照射時の収量に対する比は、Auger 電子が放出された Rydberg 状態の主量子数 n が大きいほど増加する傾向があった。主量子数 n が大きいほど Rydberg 状態の軌道半径 $\langle r_{n,l} \rangle$ は大きくなる。

$$\langle r_{n,l} \rangle \sim \frac{3n^2 - l(l+1)}{2Z_{\text{core}}} \quad (5.4)$$

ここで Z_{core} は Rydberg 電子から見たイオンの電荷である。Rydberg 状態の軌道半径程度の距離以内に他のイオンが存在すれば、Rydberg 状態はもはや単原子イオンの状態ではなく複数のイオンによる束縛状態になる。Rydberg 状態の軌道半径が大きいほど複数のイオンからの影響を受けやすいために、Auger 電子収量におけるクラスター効果の強さが Auger 電子が放出された Rydberg 状態の主量子数 n に応じて変化している可能性が考えられる。

Auger 電子は測定した電子エネルギーから Auger 電子を放出したイオンの状態がわかるため、今後クラスターイオン照射の際に薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子をより詳しく調べることで、固体内におけるイオンの Rydberg 状態に関する情報が得られることが期待される。

5.3 散乱電子の固体内輸送過程におけるクラスター効果

Convoy 電子収量の標的膜厚依存性を調べた結果、クラスターイオン照射時は単原子照射時に比べ convoy 電子の減衰長が伸びることがわかり、散乱電子の固体内における輸送過程にクラスター効果があることが示された。クラスターイオン照射時に convoy 電子の減衰長が伸びるという結果は、固体内においてイオンに伴走する電子が複数のイオンによる Rydberg 状態へ捕獲されると考えることで解釈できた。また、イオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量にもクラスター効果がみられた。さらに Auger 電子におけるクラスター効果には、Auger 電子を放出した Rydberg 状態の主量子数に対する依存性がみられた。この結果は散乱電子の固体内における輸送過程にクラスター効果があることを示すとともに、固体内の散乱電子輸送においてイオンと散乱電子の相対エネルギーが重要なパラメータであることを示唆していると考えられる。

高速イオンを固体へ照射した際にイオンの束縛電子がどうなるかについて、1940 年代に Bohr が非常にシンプルなモデルを提唱している [26]。高速イオンが固体へ入射すると、最初の数原子層のうちにイオンの速度より遅い軌道速度の束縛電子はイオンからはがれて自由電子になるというものだ。イオン速度より遅い軌道速度の束縛状態は、イオンが固体原子と非弾性衝突を繰り返す過程でイオン化される断面積の方が新たに束縛状態に電子が入る断面積よりも大きく、寿命が短いと考えられるためである。Bohr's criteria と呼ばれるこのモデルが提唱されて 70 年ほどが経つが、固体内を進む高速イオンの Rydberg 状態は非常に寿命が短く、存在しづらいと考えられて注目されてこなかった。

本実験で照射したイオンと同速度の電子のエネルギーは 160 eV で、イオンに伴走する電子の輸送過程に関わる Rydberg 状態の束縛エネルギー < 1 eV に比べてはるかに大

きい。本研究は、固体内を進む高速イオンの Rydberg 状態が固体内でイオンに伴走する電子の輸送過程に重要な役割を果たしていることを実験的に示した点で新しく、興味深い。見方を変えれば、本研究では高速クラスターイオンを用いて、クラスターに限らない高速イオンを固体へ照射した際の固体内における散乱電子の輸送過程を調べたともいえる。高速クラスターイオンを固体へ照射した際の基礎過程を調べることで、高速イオンを固体へ照射した際の基礎過程を解明するうえでも重要だと再確認できた。

また、本研究で着目したのは固体内でイオンに伴走する電子から生成される convoy 電子や透過イオンの Rydberg 状態におけるクラスター効果だが、イオン間距離に鈍感で長いイオン間距離まで残り続けるという傾向は二次電子収量におけるクラスター効果も共通している。このことから、本研究における結果は固体内でイオンに伴走する電子が散乱電子の輸送過程で重要な役割を果たしている可能性を示唆していると考えられる。

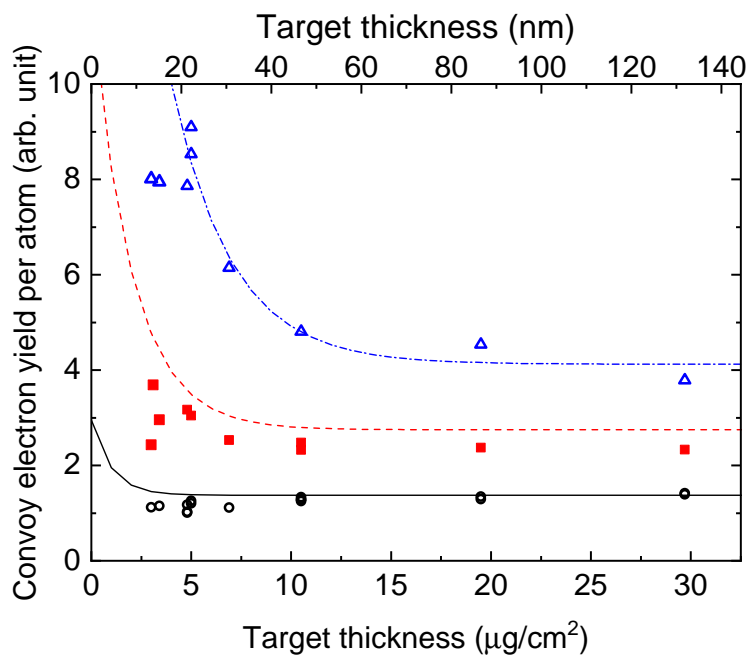


図 5.1 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオン照射時の convoy 電子収量の標的膜厚依存性. 縦軸は単原子あたりの convoy 電子収量となるように規格化されている. 上辺の軸に標的膜厚の目安として, 標的密度をグラファイトの密度 2.260 g/cm^3 とした場合の標的の厚さを長さで示した. C^+ , C_2^+ , C_3^+ イオン照射時の convoy 電子収量をそれぞれ丸, 四角, 三角で示した. また C^+ , C_2^+ , C_3^+ 照射時のプロットに対応する減衰曲線をそれぞれ実線, 破線, 一点鎖線で示した.

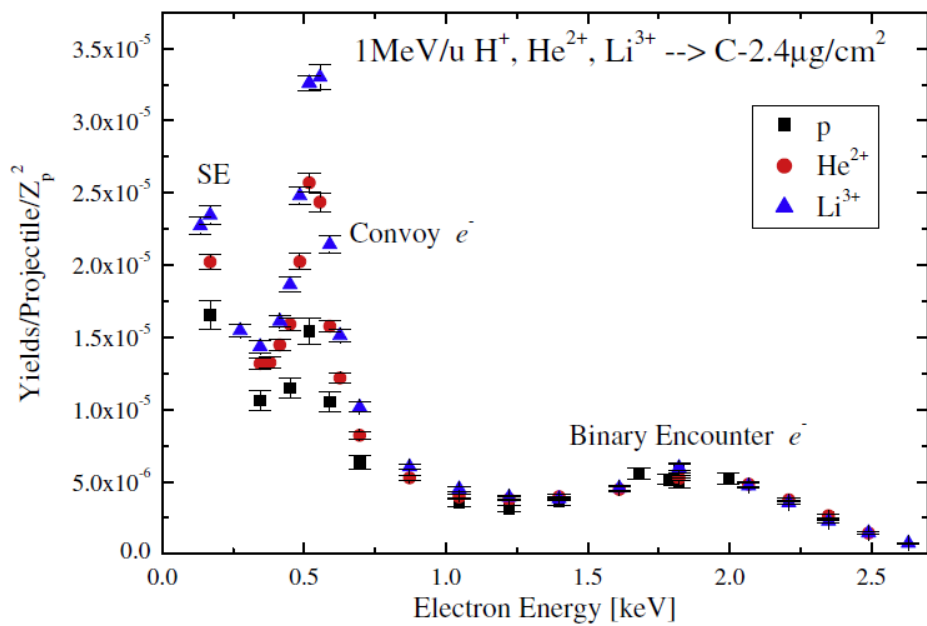


図 5.2 $1 \text{ MeV/u H}^+, \text{He}^{2+}, \text{Li}^{3+}$ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際、 0 度方向における電子エネルギースペクトル [25]。縦軸はイオン-固体原子衝突の断面積の因子（核電荷の二乗）で規格化されている。 $\text{H}^+, \text{He}^{2+}, \text{Li}^{3+}$ イオン照射時の電子収量がそれぞれ黒い四角、赤い丸、青い三角で示されている。Binary collision のピークはすべてのイオン種でよく一致しているが、convoy 電子ピークだけは $\text{H}^+, \text{He}^{2+}, \text{Li}^{3+}$ 照射の順で収量が増加している。

第 6 章

結論

本研究では散乱電子の固体内での輸送過程に着目し、高速クラスターイオンを固体薄膜に照射した際の 0 度電子分光測定を行った。特にイオンに同速度で伴走する電子 (convoy 電子) の収量と、固体薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量におけるクラスター効果を調べた。

3.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1 - 3$) イオンをさまざまな膜厚の固体薄膜へ照射して convoy 電子収量を測定した結果、 C^+ 照射時における convoy 電子収量は測定した範囲の標的膜厚に対してほぼ一定だったのに対し、 C_2^+ 、 C_3^+ 照射時における convoy 電子収量は標的膜厚が厚くなるにしたがって指数関数的に減衰し、 $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ より厚い薄膜では標的膜厚の変化に対してほぼ一定になった。また、厚い薄膜で convoy 電子収量が収束する値は C^+ 照射、 C_2^+ 照射、 C_3^+ 照射の順に増加した。これらの結果から C_2^+ 、 C_3^+ 照射時には C^+ 照射時に比べて convoy 電子の減衰長が長くなっていることがわかった。

Convoy 電子の減衰長は、固体内において照射イオンに対する相対エネルギーの小さい電子が照射イオンの軌道半径の大きい束縛状態 (Rydberg 状態) への捕獲とイオン化を繰り返すことによって同速度の自由電子よりも長くなると考えられる。クラスターイオン照射の場合は、Rydberg 状態の軌道半径に比べて狭い領域に複数のイオンが照射されることによって Rydberg 状態が複数のイオンによる束縛状態になり、さらに減衰長が伸びたと解釈することができる。

また、3.5 MeV/atom C^+ 、 C_2^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射し、薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態から放出される Auger 電子の収量を測定した結果、 C_2^+ 照射時における Auger 電子収量が C^+ 照射時に比べて減少する効果がみられた。さらに C_2^+ 照射時における Auger 電子収量の C^+ 照射時の収量に対する比は、Auger 電子が放出された Rydberg 状態の主量子数 n が大きいほど増加する傾向があった。Convoy 電子と同様の過程で生成される薄膜を透過したイオンの Rydberg 状態にも、クラスター効果があらわれていることが確かめられた。

数 eV 以下の非常に小さい束縛エネルギーの Rydberg 状態が固体内で存在し、convoy 電子の輸送過程で重要な役割を果たすことが実験的に示されたことは新しく、興味深い。見方を変えれば、本研究では高速クラスターイオンを用いて、クラスターに限らない高速イオンを固体へ照射した際の固体内における散乱電子の輸送過程を調べたともいえる。高速クラスターイオンを固体へ照射した際の基礎過程を調べることが、高速イオン

を固体へ照射した際の基礎過程を解明するうえでも重要だということが再確認された。

また、本研究で着目したのは固体内でイオンに伴走する電子から生成される convoy 電子やイオンの Rydberg 状態におけるクラスター効果だが、イオン間距離に鈍感で長いイオン間距離まで残り続けるという傾向は二次電子取量におけるクラスター効果も共通している。このことから、本研究における結果は固体内でイオンに伴走する電子が散乱電子の輸送過程で重要な役割を果たしている可能性を示唆していると考えられる。

謝辞

博士論文を執筆するにあたり、支えてくださった多くの方々に感謝を申し上げます。

特に指導教官である筑波大学数理物質系の富田成夫先生には、研究についての相談から論文の書き方まで多くのことをご指導いただきました。わたしは簡単にパニックに陥ったり元気をなくしたりする非常に不安定な学生だったと思いますが、常に親身になって相談に乗ってくださいました。本当にありがとうございました。

また本研究の共同研究者である木下亮さん、舟田周平さん（筑波大学数理物質科学研究科）、松田誠さん（日本原子力研究開発機構）、今井誠先生（京都大学）、川面澄先生（理論放射線研究所）、左高正雄先生、笹公和先生（筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門）には本当にお世話になりました。

木下さん、舟田さんは電子エネルギースペクトルを測定するための回路の制御系をLabViewを用いてアップデートしてくださいました。このプログラムがなければ測定中にスペクトルを見ることもできず、実験の進捗はまったく違うものになっていたと思います。本論文の成果は彼らの努力の賜物です。

松田さんは深夜に及ぶ実験にも関わらず、常に加速器の制御盤の前で私たちのチームに関する注文にに応じてくださいました。またビームラインのアライメントを見直し、よりよいビームが通せるよう尽力してくださいました。

左高先生もまた、深夜にわたって加速器を運転し続けるために制御盤の前で過ごしてくださいました。他に真空計、測定回路系、炭素薄膜標的の準備など、実験に関わる様々な点でご指導いただきました。

今井誠先生、川面澄先生、笹公和先生には実験の結果についてコメントをいただいたり、イオンの平均電荷、電子分光、加速器などに関する知識を教えてくださいました。皆様の温かいコメントでなんとかここまで研究を続けていくことができました。

加えて、いつも丁寧にビーム輸送をしてくださった日本原子力研究開発機構原子力科学研究所研究炉加速器技術部加速器管理課の職員の皆様にも深くお礼申し上げます。最長8時間にも及ぶ測定にもかかわらず、ビームは概ね安定していて、夜中も安心して電子エネルギースペクトルを眺めていることができました。皆様の技術とプロ精神に敬意を表します。

本研究について議論し、貴重な意見を下さった筑波大学の工藤博先生、岡山理科大学の金子敏明先生、量子科学技術研究開発機構の鳴海一雅博士に感謝いたします。わたしの拙い説明に親身に耳を傾けてくださり、常に励ますようなご意見をくださいました。今後より議論が進むように実験・考察を進めていきたいと思っております。

また、本論文の審査を通じて様々な意見を下さった筑波大学数理物質系の佐々木正洋

先生，藤田淳一先生に感謝いたします。つい自分の分野に固執して視野狭窄になりがちなわたしに，他分野の視点から多くの有意義なコメントをくださいました。本当にありがとうございました。

筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門の技術専門職員である石井聡さん、田島義一さん、高橋努さんに感謝いたします。1 MV タンデトロンや6 MV タンデム加速器の運転について基礎から教えていただいたり，金属工作についての相談に乗っていただいたり，他にもコースの設営などで困ったことがあったときはいつも助けていただきました。まだまだ本当に未熟ですが，皆さんに教わったことを糧に，少しずつ勉強して自分で装置を組めるようになっていけたらと思います。

これまでわたしとともに実験に参加してくれた富田研究室のメンバー全員に感謝します。この0度電子分光実験は深夜までデータを取り続けることが往々にしてあったため，物理や装置の知識はともかく，深夜に起きてスペクトルを見ていてくれる人員が必要でした。いきなり東海村に連れてこられて文句を言いながらも，スペクトルが奇妙な動きをした時にわたしや富田先生を起こしてくれた皆様がいたからこそ，このデータをとることができました。谷津さん，野本さん，山本さん，浅川さん，菅沼さん，本当にありがとうございました。

最後にわたしの長い学生生活を支えてくれた家族に感謝して，謝辞とさせていただきます。

関連論文

Y. Shiina, R. Kinoshita, S. Funada, M. Matsuda, M. Imai, K. Kawatsura, M. Sataka, K. Sasa, S. Tomita, “Measurement of Auger electrons emitted through Coster–Kronig transitions under irradiation of fast C_2^+ ions” , *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2018.10.041> (2018).

付録 A

透過イオンから放出された KLL Auger 電子

3.5 MeV C^+ 単原子イオンを炭素薄膜標的へ照射して 0 度方向（ビーム進行方向）で測定した電子エネルギースペクトルを図 2.3 に示した。縦軸の電子収量は対数スケールである。750 eV 付近に見える小さなピークは照射イオン静止系に換算すると約 230 eV にあたり、透過イオンから 0 度方向へ放出された KLL Auger 電子によるピークである。本章では透過イオンから前方へ放出された KLL Auger 電子収量におけるクラスター効果について述べる。

3.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1, 2$) イオンを薄膜標的へ照射した際、イオンから 0 度方向へ放出された KLL Auger 電子の電子エネルギースペクトルをイオン静止系に直したものを図 A.1 に示す。 C^+ 照射時、 C_2^+ 照射時のピーク位置は良く一致している。 C_2^+ 照射時のピークの方がやや幅広に見えるが、これはイオン間のクーロン反発によりイオンのエネルギー幅が広がる効果（Kinetic Energy Release）の影響である。詳しくは付録 B に示した。観測された Auger 電子は初期状態 $(1s2s2p)^4P^0$, $(1s2s^22p)^3P^0$, $(1s2s^22p)^1P^0$, $[1s(2s2p)^1P^0]^2P^0$, $(1s2s^22p^2)^4P$, $(1s2s^22p^2)^2D$ といった透過イオンの三電子系、四電子系、五電子系から放出された電子であった。もっとも収量が多いのはイオン静止系で 230 eV 付近にある初期状態 $(1s2s2p)^4P^0$ からの KLL Auger 電子である。

C^+ , C_2^+ , C_3^+ を標的膜厚 4.8–29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素薄膜標的へ照射した際のイオン静止系での KLL Auger 電子スペクトルを図 A.2, A.3, A.4 に示す。比較を簡単にするため、各スペクトルからバックグラウンドを引いてある。図 A.2 の C^+ 照射時の KLL Auger 電子スペクトルをみると、標的膜厚が厚いほど少しずつピーク幅が広がっている。これは標的内での固体原子との散乱によるストラグリングでイオンのエネルギー幅が広がっている効果を考えていると考えられる。 C_2^+ , C_3^+ 照射時は薄い標的の場合でもイオン間のクーロン反発によりイオンのエネルギー幅が C^+ 照射の場合より広がっており、標的膜厚によるピーク幅の変化は認められない。また C_3^+ 照射時のスペクトル（図 A.4）において、4.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的の Auger 電子ピークの面積が 10.5, 29.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的のピークより大きく、ピーク幅がより広がっている。

図 A.2, A.3, A.4 のスペクトルにおいて 220 eV から 250 eV までのピークをまとめ

て積分し、求めた収量を標的膜厚の関数としてプロットしたものを図 A.5 に示す。4.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的では C^+ , C_2^+ , C_3^+ 照射の順に KLL Auger 電子収量が増加している。標的膜厚が厚くなるにつれて収量の差が小さくなり、29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的では C^+ , C_2^+ , C_3^+ 照射の KLL Auger 電子収量がほぼ一致している。薄い標的で C^+ , C_2^+ , C_3^+ 照射の順に KLL Auger 電子収量が増加しているのは、イオンの電荷分布におけるクラスター効果の影響だと思われる。分子照射時においてはクラスター効果により、標的を透過したイオンの電荷分布が同速度の単原子照射時の電荷分布からずれる可能性がある。金子の計算によると、2 MeV/atom C_3 を 3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 炭素薄膜へ照射した場合の透過イオンの平均電荷は C 原子照射の場合より 10% 程度抑制されうる [10]。標的が厚くなるほど平均電荷におけるクラスター効果は弱くなり、50 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ で 1% 程度になる。標的膜厚 4.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ において、 C_3^+ 照射時の KLL Auger 電子収量は C^+ 照射時の約 1.7 倍になっており、平均電荷の増加が 10% 程度なのに比べると非常に大きな増幅効果があらわれている。

ここで KLL Auger 電子収量に直接寄与するのは平均電荷ではなく、イオン全体における KLL Auger 電子を放出する励起状態の割合である。平均電荷が変化すると、イオンの電荷分布が変わる。C 原子を薄膜標的へ照射した際の透過イオンの平衡電荷分布から、3.5 MeV C の平均平衡電荷 3.73 から 10% 低い平均電荷のときの電荷分布を見積もってみる。平均平衡電荷が 3.36 になるような C 原子のエネルギーは約 3 MeV である [13]。3.5 MeV C と 3 MeV C の平衡電荷分布を比較すると、 C^{3+} は約 25% から 40% に、 C^{2+} は約 3% から 6% に増加する。平均電荷が 10% 増加するだけで、もともと存在比が少なかった C^{2+} のようなイオンが劇的に増加することがわかる。 C_3^+ 照射時のスペクトル (図 A.4) において 4.8 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的の Auger 電子ピークの面積が 10.5, 29.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的のピークより大きく、ピーク幅がより広がっているのは、KLL Auger 電子を放出する C^{3+} , C^{2+} などが増加した影響だと思われる。ピーク幅が広く見えるのは、 C^{2+} が増えたことで 235 eV 付近にある初期状態 $(1s2s^22p)^3\text{P}^0$ からの Auger 電子のピークが高くなり、230 eV 付近に見える $(1s2s2p)^4\text{P}^0$ からの Auger 電子ピークと重なったためだと考えられる。

KLL Auger 電子収量の標的膜厚依存性において、標的膜厚 4.8–10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度の薄い標的で透過イオンの電荷分布におけるクラスター効果の影響が見えた。標的膜厚が厚くなるにつれて収量の差が小さくなり、29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的でクラスター効果は見えなくなった。二次電子収量におけるクラスター効果のようなより厚い標的でも残る効果はみられなかった。

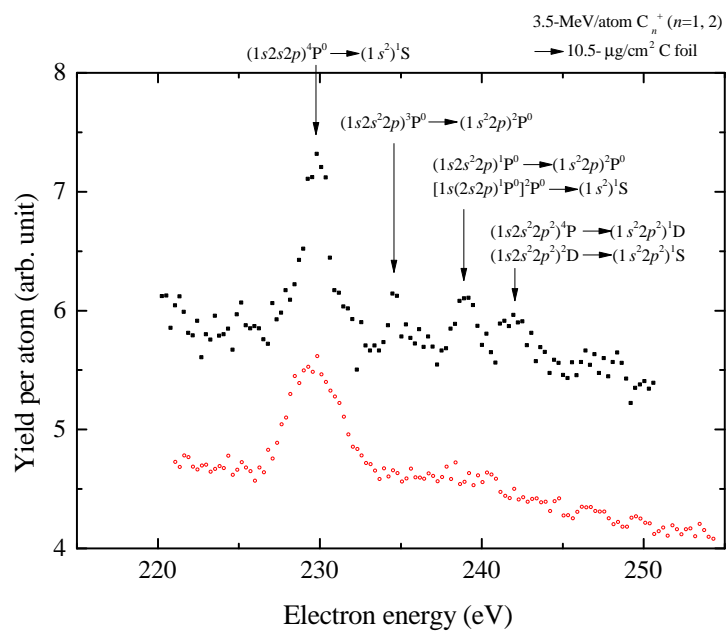


図 A.1 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ イオンを $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的へ照射した時の KLL Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). C^+ 照射時のスペクトルを黒い四角, C_2^+ 照射時のスペクトルを赤い丸で示した.

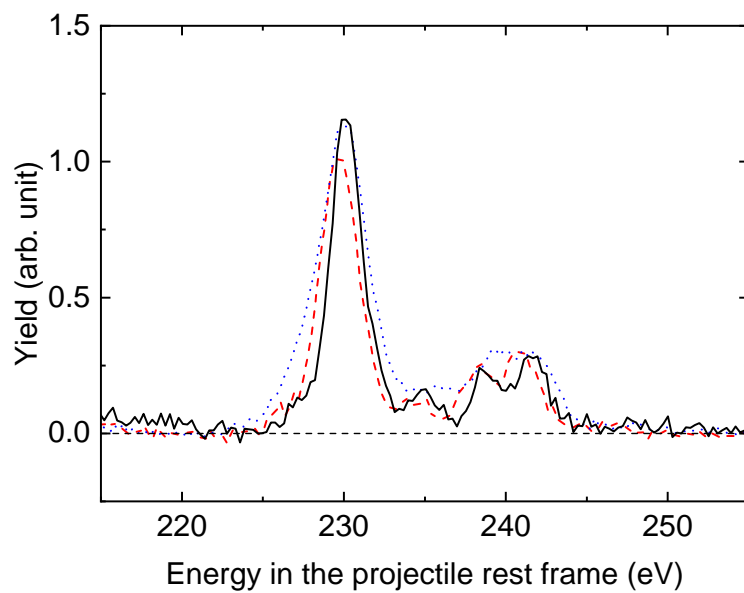


図 A.2 3.5 MeV C^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した時の KLL Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). 各スペクトルからバックグラウンドは引いてある. 標的膜厚 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する結果をそれぞれ黒い実線, 赤い破線, 青い点線で示した.

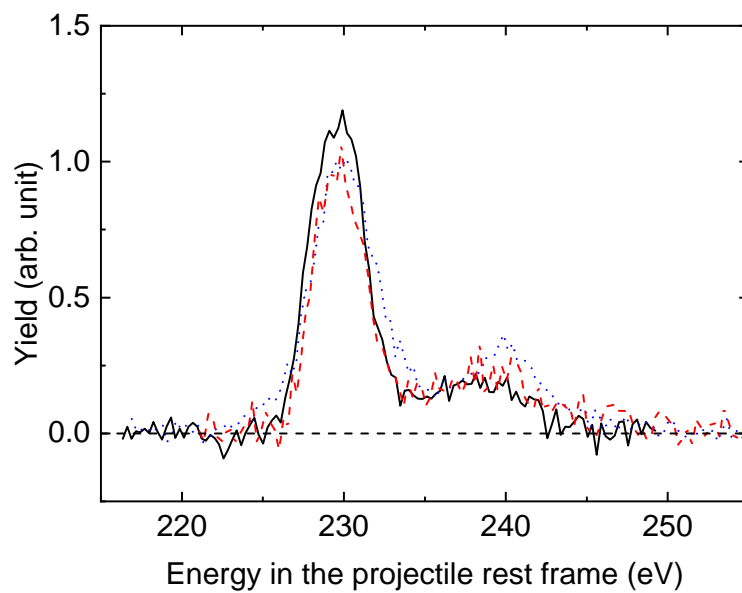


図 A.3 3.5 MeV/atom C_2^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した時の KLL Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). 各スペクトルからバックグラウンドは引いてある. 標的膜厚 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する結果をそれぞれ黒い実線, 赤い破線, 青い点線で示した.

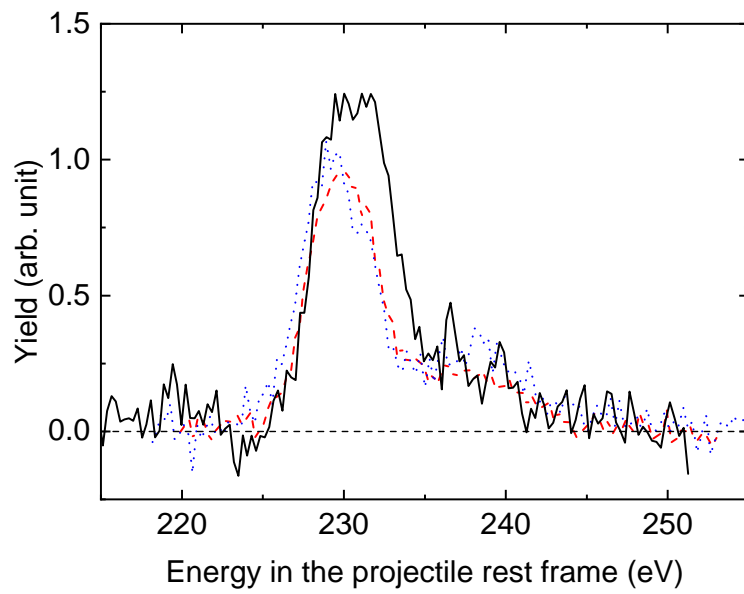


図 A.4 3.5 MeV/atom C_3^+ イオンを炭素薄膜標的へ照射した時の KLL Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). 各スペクトルからバックグラウンドは引いてある. 標的膜厚 4.8, 10.5, 29.7 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に対する結果をそれぞれ黒い実線, 赤い破線, 青い点線で示した.

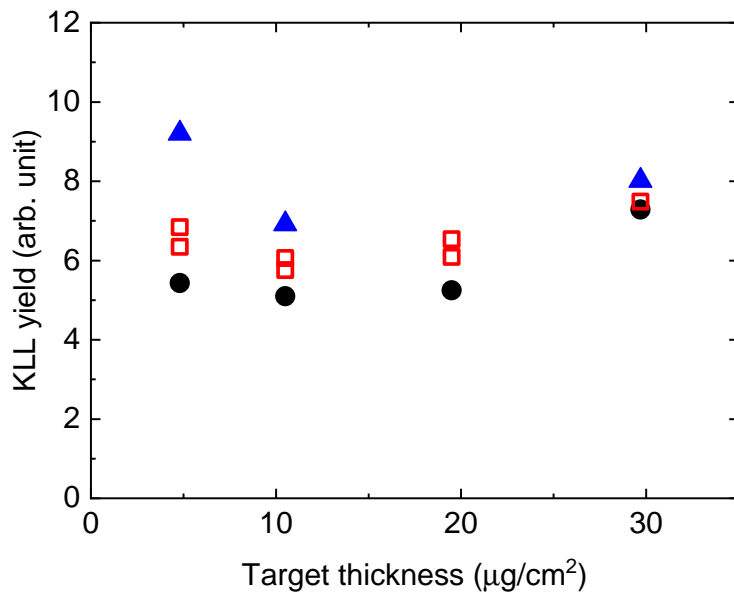


図 A.5 3.5 MeV/atom C⁺, C₂⁺, C₃⁺ イオンを炭素薄膜標的へ照射した際の, KLL Auger 電子収量の標的膜厚依存性. C⁺, C₂⁺, C₃⁺ 照射時の収量をそれぞれ黒い丸, 赤い四角, 青い三角で示した.

付録 B

イオン間のクーロン反発による電子エネルギーの広がり

3.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1, 2$) イオンを薄膜標的へ照射した際、イオンから 0 度方向へ放出された KLL Auger 電子の電子エネルギースペクトルをイオン静止系に直したものを図 A.1 に示した。 C^+ 照射時、 C_2^+ 照射時のピーク位置は良く一致しているが、 C_2^+ 照射時のピークの方がやや幅広に見える。これは複数のイオン間のクーロン反発によりイオンのエネルギー幅が広がる効果 (Kinetic Energy Release) の影響と考えられる。

3.5 MeV C_2 が標的入射直後に平均平衡電荷 \bar{q} (3.7 価) の単原子イオンへ解離すると仮定すると、イオン間のクーロン力によるポテンシャルエネルギー U は以下のように計算できる。

$$U = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\bar{q}^2}{r} \quad (\text{B.1})$$

r はイオン間の距離であり、ここでは C_2 分子の結合距離 1.245 Å とする。計算の結果は $U = 161$ [eV] となる。イオン間にはたらくクーロン反発によってイオン間距離が十分大きくなれば、クーロンポテンシャルはすべてイオンの運動エネルギーに変換される。2 つのイオンが半分ずつ U を運動エネルギーとして受けとるとして、重心系におけるイオン間のクーロン反発による運動のエネルギーを電子のエネルギーに直すと $\epsilon_q = 3.67 \times 10^{-3}$ [eV] である。

C_2 から解離したイオンの重心系における Auger 電子の速度を \mathbf{v}_p 、重心系におけるイオン間のクーロン反発による運動の速度を \mathbf{v}_q 、Auger 電子を放出したイオンの静止系での Auger 電子の速度を \mathbf{v}_A とする。イオン間のクーロン反発による運動の方向に対して Auger 電子が放出される方向がなす角を θ とする。ここで $v_q \ll v_A$ であり、0 度方向の電子分光器へ入射するため \mathbf{v}_A はほぼ 0 度の方向成分をもっている。

$$\mathbf{v}_p = \mathbf{v}_q + \mathbf{v}_A \quad (\text{B.2})$$

$$\frac{1}{2} m_e v_p^2 = \frac{1}{2} m_e |\mathbf{v}_q + \mathbf{v}_A|^2 \quad (\text{B.3})$$

$$= \frac{1}{2} m_e \{v_q^2 + v_A^2 + 2v_q v_A \cos \theta\} \quad (\text{B.4})$$

速度をそれぞれイオンの重心系における Auger 電子のエネルギー ϵ_p 、重心系におけるイオン間のクーロン反発による運動と同速度の電子のエネルギー ϵ_q 、Auger 電子を放出

したイオンの静止系での Auger 電子エネルギー ε_A へと置き換えると,

$$\varepsilon_p = \varepsilon_q + \varepsilon_A + 2\sqrt{\varepsilon_q\varepsilon_A} \cos \theta \quad (\text{B.5})$$

クーロン反発によってイオンが広がる方向 $\mathbf{v}_q/|\mathbf{v}_q|$ が等方的だとすると, ビーム軸へ射影された ε_p のエネルギースペクトルは, ε_p の最小値 ε_{\min} から最大値 ε_{Max} までの幅をもつ矩形波になる.

$$\varepsilon_{\min} = \varepsilon_q + \varepsilon_A - 2\sqrt{\varepsilon_q\varepsilon_A} \quad (\text{B.6})$$

$$\varepsilon_{\text{Max}} = \varepsilon_q + \varepsilon_A + 2\sqrt{\varepsilon_q\varepsilon_A} \quad (\text{B.7})$$

$\varepsilon_q = 3.67 \times 10^{-3}$ [eV] として, $\varepsilon_A = 1$ [eV], 8 [eV] の場合の ε_{\min} , ε_{Max} をもとめる. $\varepsilon_A = 1$ [eV] の場合, $\varepsilon_{\min} = 0.883$, $\varepsilon_{\text{Max}} = 1.125$. $\varepsilon_A = 8$ [eV] の場合, $\varepsilon_{\min} = 7.661$, $\varepsilon_{\text{Max}} = 8.347$ となる. ε_q は小さい値だが $2\sqrt{\varepsilon_q\varepsilon_A}$ の項が意外に大きく, Kinetic Energy Release によって 0.2 – 0.7 eV 程度電子エネルギーが広がることがわかった.

実際に測定したスペクトルの C_2^+ 照射時のピーク幅の広がり Kinetic Energy Release による広がり程度かを確認するため, C^+ 照射時のスペクトルに Kinetic Energy Release による矩形波の応答関数を畳み込み, C_2^+ 照射時のスペクトルと同程度にピーク幅が広がるかを調べた. 3.5 MeV/atom C_n^+ ($n = 1, 2$) イオンを薄膜標的へ照射した際, イオンから 0 度方向へ放出された KLL Auger 電子の電子エネルギースペクトルをイオン静止系に直したものを図 A.1, 図 B.1 に示した. 図 B.1 のスペクトルでは, C^+ イオン照射時のスペクトルは矩形波を畳み込んでピークを鈍らせてある. 図 B.1 中の C^+ イオン照射時のスペクトルは C_2^+ 照射時と非常に良く似た形状になった. 同様に Coster–Kronig 遷移によりイオンから放出された Auger 電子のスペクトルを図 B.2, 図 B.3 に示す. 図 B.3 のスペクトルでは, C^+ イオン照射時のスペクトルは矩形波を畳み込んでピークを鈍らせてある. Coster–Kronig 遷移による Auger 電子のスペクトルも C^+ 照射時のスペクトルに Kinetic Energy Release による矩形波の応答関数を畳み込むことでおおむね C_2^+ 照射時と似た形状になった.

分子照射時の Auger 電子ピーク幅が単原子照射時よりも広がるのは, 複数のイオン間のクーロン反発によりイオンのエネルギー幅が広がる効果 (Kinetic Energy Release) の影響であることが確かめられた. クーロン反発によるイオンの運動速度は小さくとも, Auger 電子の速度との積の項がことのほか大きく, Kinetic Energy Release の効果が電子エネルギースペクトルにあらわれることがわかった.

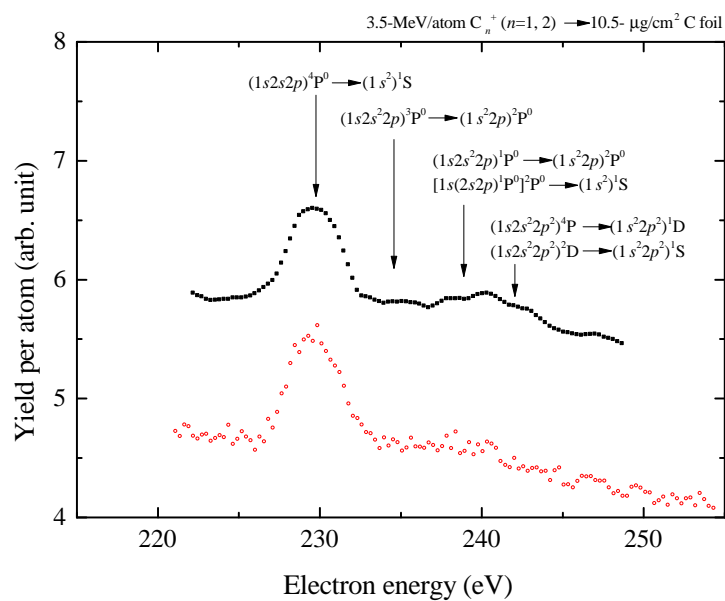


図 B.1 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ イオンを $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的へ照射した時の KLL Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). C^+ 照射時のスペクトルを黒い四角, C_2^+ 照射時のスペクトルを赤い丸で示した. C^+ イオン照射時のスペクトルは, C_2^+ イオン照射時のスペクトルと比較するため, 矩形波を積み込んでピークを鈍らせてある.

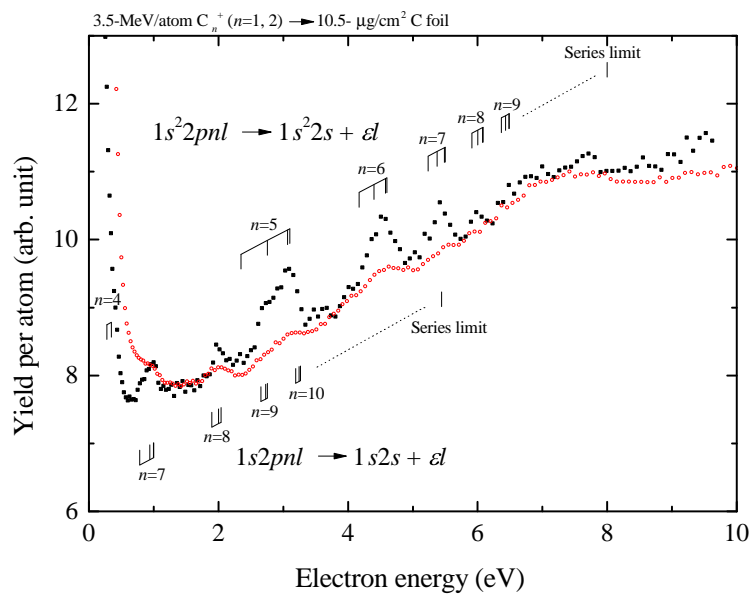


図 B.2 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ イオンを $10.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的へ照射した時の Coster-Kronig 遷移による Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). C^+ 照射時のスペクトルを黒い四角, C_2^+ 照射時のスペクトルを赤い丸で示した.

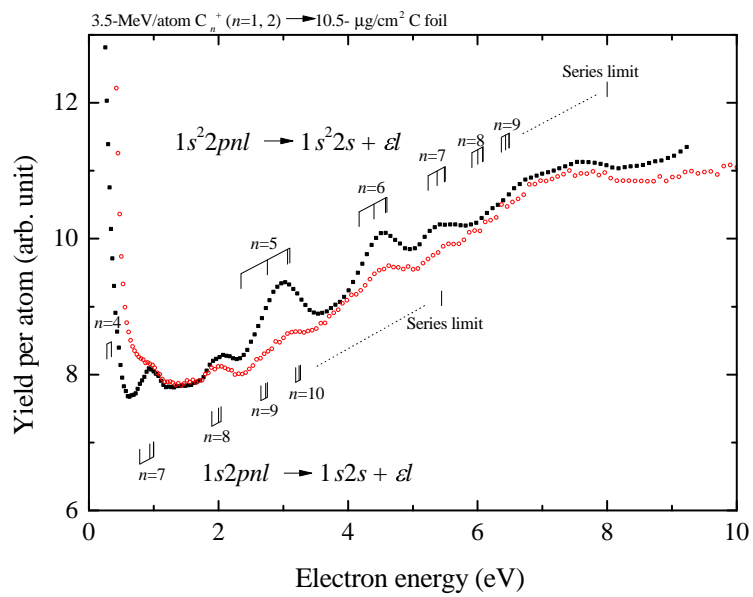


図 B.3 3.5 MeV/atom C^+ , C_2^+ イオンを 10.5 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 厚の標的へ照射した時の KLL Auger 電子ピーク付近の電子エネルギースペクトル (イオン静止系). C^+ 照射時のスペクトルを黒い四角, C_2^+ 照射時のスペクトルを赤い丸で示した. C^+ イオン照射時のスペクトルは, C_2^+ イオン照射時のスペクトルと比較するため, 矩形波を積み込んでピークを鈍らせてある.

参考文献

- [1] S. Bouneau, A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, M. Pautrat, M. Fallavier, J. C. Poizat, and H. H. Andersen. *Physical Review B*, Vol. 65, p. 8, 2002.
- [2] M. Fallavier, R. Kirsch, S. N. Morozov, J. C. Poizat, J. P. Thomas, and N. Wehbe. *Physical Review B*, Vol. 68, p. 4, 2003.
- [3] K. Hirata, Y. Saitoh, A. Chiba, Y. Narumi, K. Kobayashi, and K. Arakawa. *Applied Physics Letters*, Vol. 83, p. 4872, 2003.
- [4] 藤本文範, 小牧研一郎 (編) . イオンビーム工学 イオン・固体相互作用編. 内田老鶴圃, 東京, 1995.
- [5] W. Brandt, A. Ratkowski, and R. H. Ritchie. *Physical Review Letters*, Vol. 33, p. 1325, 1974.
- [6] K. Baudin, A. Brunelle, M. Chabot, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Gardès, P. Håkansson, Y. Le Beyec, A. Billebaud, M. Fallavier, J. Remillieux, J. C. Poizat, and J. P. Thomas. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Vol. 94, p. 341, 1994.
- [7] C. Tomaschko, D. Brandl, R. Kügler, M. Schurr, and H. Voit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Vol. 103, p. 407, 1995.
- [8] S. Tomita, M. Murakami, N. Sakamoto, S. Ishii, K. Sasa, T. Kaneko, and H. Kudo. *Physical Review A*, Vol. 82, p. 044901, 2010.
- [9] A. Brunelle, S. Della-Negra, J. Depauw, D. Jacquet, Y. Le Beyec, and M. Pautrat. *Physical Review A*, Vol. 59, p. 4456, 1999.
- [10] T. Kaneko. *Physical Review A*, Vol. 66, p. 052901, 2002.
- [11] A. Billebaud, D. Dauvergne, M. Fallavier, R. Kirsch, J. C. Poizat, J. Remillieux, H. Rothard, and J. P. Thomas. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Vol. 112, p. 79, 1996.
- [12] H. Kudo, W. Iwazaki, R. Uchiyama, S. Tomita, K. Shima, K. Sasa, S. Ishii, K. Narumi, H. Naramoto, Y. Saitoh, S. Yamamoto, and T. Kaneko. *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 45, p. L565, 2006.
- [13] K. Shima, N. Kuno, M. Yamanouchi, and H. Tawara. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, Vol. 51, p. 173, 1992.
- [14] W. Weltner Jr and R. J. Van Zee. *Chemical Reviews*, Vol. 89, p. 1713, 1989.
- [15] S. Tomita, S. Yoda, R. Uchiyama, S. Ishii, K. Sasa, T. Kaneko, and H. Kudo.

- Physical Review A*, Vol. 73, p. 060901, 2006.
- [16] H. Rothard, K. Kroneberger, A. Clouvas, E. Veje, P. Lorenzen, N. Keller, J. u. Kemmler, W. Meckbach, and K.-O. Groeneveld. *Physical Review A*, Vol. 41, p. 2521, 1990.
- [17] H. Rothard and B. Gervais. *Ion Beam Science: Solved and Unsolved Problems, Pts 1 and 2*, p. 497. The Royal Danish Academy Sciences and Letters, Denmark, Copenhagen, 2006.
- [18] A. Itoh, T. Schneider, G. Schiwietz, Z. Roller, H. Platten, G. Nolte, D. Schneider, and N. Stolterfoht. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 16, p. 3965, 1983.
- [19] P. Dahl, M. Rodbro, B. Fastrup, and M. E. Rudd. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, Vol. 9, p. 1567, 1976.
- [20] M. Matsuda, T. Nakanoya, S. Hanashima, and S. Takeuchi. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment*, Vol. 654, p. 45, 2011.
- [21] C. E. Theodosiou, M. Inokuti, and S. T. Manson. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, Vol. 35, p. 473, 1986.
- [22] Nist atomic spectra database (ver. 5.5.6), [online]. <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>, 2018.
- [23] Y. Yamazaki and N. Oda. *Physical Review Letters*, Vol. 52, p. 29, 1984.
- [24] J. Burgdörfer. *High-Energy Ion-Atom Collisions (Lecture Notes in Physics 294)*, p. 344. Springer, Berlin, Heidelberg, 1988.
- [25] H. Ogawa, K. Sorai, S. Amano, K. Ishii, and T. Kaneko. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Vol. 315, p. 291, 2013.
- [26] N. Bohr. *The penetration of atomic particles through matter*. Det Kgl. Danske Videnskabernes Selskab. Matematisk-fysiske meddelelser, bd. 18, nr. 8. I kommission hos E. Munksgaard, Copenhagen, 1948.