



5. 重イオンの物質中での荷電状態変化過程  
—硫黄イオンの炭素薄膜透過後非平衡電荷分布—

Charge-Changing Processes of Heavy Ions in Matter  
— Non-Equilibrium Charge State Distribution of Sulfur Ions after Carbon Foil Penetration —

今井 誠

京都大学 大学院工学研究科 原子核工学専攻  
Makoto IMAI

*Department of Nuclear Engineering, Kyoto University*

左高正雄, 須貝宏行, 西尾勝久, 杉山康治  
日本原子力研究所 東海研究所 物質科学研究部  
Masao SATAKA, Hiroyuki SUGAI, Katsuhisa NISHIO, Koji SUGIYAMA  
*Department of Materials Science, Japan Atomic Energy Research Institute*

川面澄, 高廣克己  
京都工芸繊維大学 工芸学部 物質工学科  
Kiyoshi KAWATSURA, Katsumi TAKAHIRO  
*Department of Chemistry and Materials Technology, Kyoto Institute of Technology*

小牧研一郎  
東京大学 大学院総合文化研究科  
Ken-ichiro KOMAKI  
*Institute of Physics, Graduate School of Arts and Sciences, University of Tokyo*

柴田裕実  
京都大学 大学院工学研究科 原子核工学専攻  
Hiromi SHIBATA  
*Department of Nuclear Engineering, Kyoto University*

**Abstract:** Charge state distributions of 2.0 MeV/u (64 MeV) sulfur ions of various initial charge states (6+, 10+, 11+, 13+) after passing through 0.9, 1.1, 1.5, 2.0, 3.0, 4.7, 6.9 and 10  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  carbon foils have been studied experimentally using the heavy ion spectrometer “ENMA”. Measured charge state distributions do not flat off to establish equilibrium within the measured thickness, proving to be the first systematic measurement of non-equilibrium charge state distribution using solid target at this energy range. The mean charge states and their distribution widths almost saturate to 12.4 and 1.03, respectively, for all initial charge states examined. Calculation with ETACHA code, developed by Rozet et al. [Nucl. Instr. and Meth. B 107 (1996) 67], is employed, although the present impact energy is lower than the assumed energy region for this code. It was also confirmed that a certain portion of  $^{16}\text{O}^{q+}$  ( $q = 3, 4, 7$ ) beam is included in  $^{32}\text{S}^{q+}$  ( $q = 6, 8, 14$ ) beam provided from the Tandem Accelerator, which originates in the Negative Ion Source forming  $\text{O}_2^-$ .

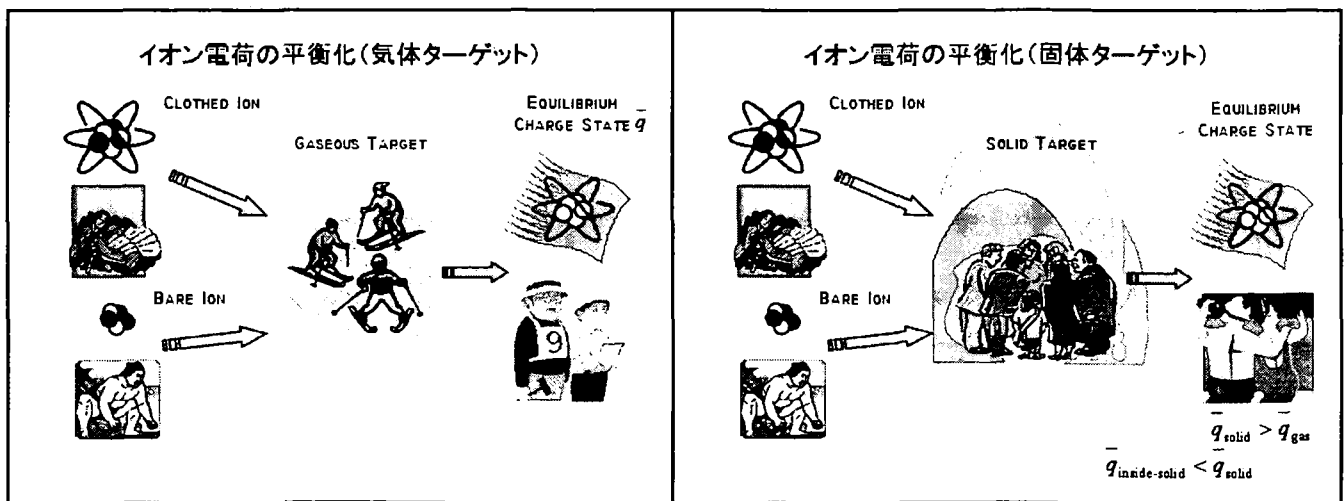
本稿所収の図版 (カラー版) は、<http://www.nucleng.kyoto-u.ac.jp/~imai/Tandem05/> にてご覧いただけます。

序

イオンビームが固体あるいは気体状のターゲットに入射すると、ターゲット内部で、放射線と物質との相互作用と大括できる、入射イオンあるいはターゲットの励起、電離、入射イオンとターゲットの間の電子移行などの様々な反応が生ずる。入射イオン（正イオンとする）にターゲットから電子が移行した場合（電子捕獲過程）、入射イオンはその価数を減じ、逆に入射イオンの電子がターゲットに移行あるいは電離された場合（電子損失過程）、入射イオンはその価数を増やす。容易に想像できるように、電子捕獲過程はイオンの保持する電子数が少なければ少ないほど起こりやすく、電子損失過程はイオンの保持する電子数が多いほど起こりやすいため、ターゲット内部で入射イオンが必要十分な回数の衝突を繰り返した後は、入射イオンは、入射時の価数にかかわらず、電子捕獲と電子損失の過程が相殺するようなある価数となる。（電荷平衡）実際の衝突では、すべての入射イオンが単一の価数を示すわけではなく、ある値を中心としたガウス分布で表現できる電荷分布となり、その平均値  $\bar{q} = \sum_q qF(q)$  を

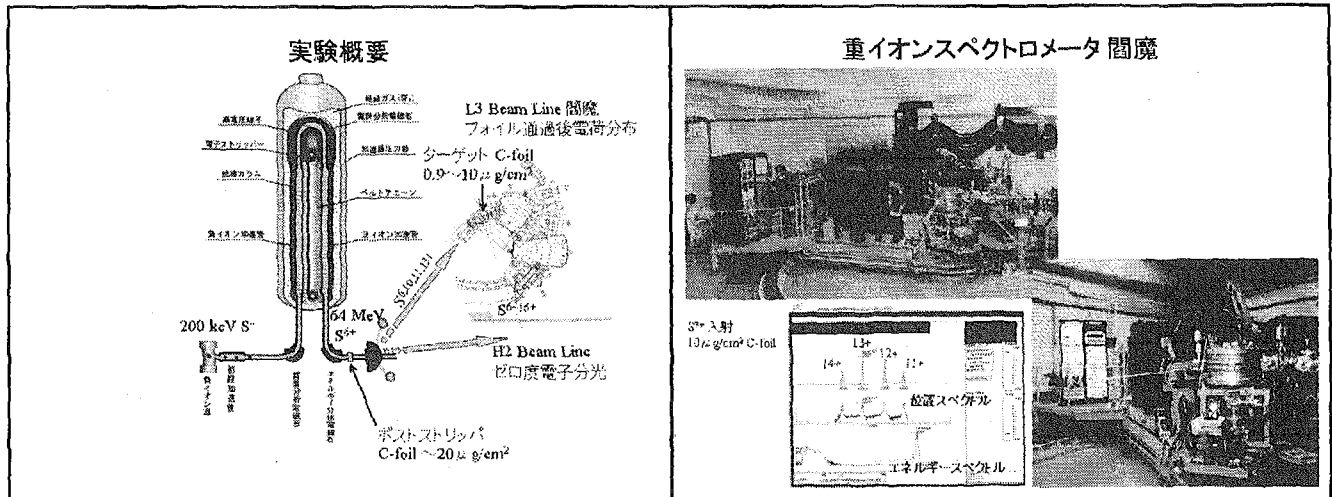
平衡平均電荷と、 $d = \left[ \sum_q (q - \bar{q})^2 F(q) \right]^{1/2}$  を分布巾と呼ぶ。ここで、 $q$  と  $F(q)$  はそれぞれイオン価数とその存在比である。（スライド1）

ターゲットが固体の場合、気体ターゲットと異なり、衝突により励起されたイオンが脱励起する前に次の衝突を受け、多重励起状態や高励起状態が作られやすい。固体中では、ある程度以上の高励起状態は電子軌道の半径が固体原子の原子間距離を越えるため、瞬く間に衝突電離されることになり、例えば炭素薄膜中での4電子系硫黄イオン  $S^{12+}$  を考えると、主量子数  $n=5$  程度以上への励起は、即電子損失となる。また多重励起状態は、イオンが固体から出射して励起を維持できなくなると瞬時に脱励起され、オージェ電子を放出する可能性がある。これらにより、一般に固体状のターゲットを通過した後の平衡平均電荷は、気体状のターゲットを通過した後の平衡平均電荷より大きな値（高電離）となる。（密度効果）固体ターゲットの場合はさらに、出射時のオージェ過程により瞬間的に価数を変えるため、実際に測定される平均電荷は、固体内での平均電荷より高い値となり、固体中での電荷分布を「直接」測定することは困難であることが知られている。（スライド2）



スライド 1

スライド 2



スライド3

スライド4

物質透過後のイオンビームの平衡平均電荷と分布巾は、イオンビームと物質との相互作用を律する基本的なパラメータのひとつであることから、古くより実験研究が行われ、その結果は、固体ターゲット、気体ターゲットそれぞれにつき、種々の経験式にまとめられている。[1-4]

筆者らは、固体中での励起状態にあるイオンの電荷分布を、「推測」する実験計測をタンデム加速器 H2 ビームライン設置の「イオンビーム固体分析装置」を利用した「ゼロ度電子分光法」により実施してきており [5]、極薄炭素ターゲットと硫黄イオンの衝突実験を通し、ターゲット出射後の電荷分布が、平衡状態に達する以前の非平衡状態にあることを見出した。従前タンデム領域のエネルギーにおける固体ターゲットに対する電荷測定実験は、比較的厚いターゲットを使用し平衡に達した後の電荷分布を測定したものがほとんどであり、非平衡電荷分布の測定例は極めて限られていたため、極薄炭素ターゲット透過法による非平衡電荷分布測定実験を、L3 ビームライン設置の重イオンスペクトロメータ「閻魔」を利用して新たに実施している。その結果を報告する。

### 実験

実験は、タンデム加速器 L3 ビームライン設置の重イオンスペクトロメータ閻魔とその後方に設置された1次元位置有感ガスチェンバを利用して実施している。タンデムから 2.0 MeV/u (64 MeV) S<sup>6+</sup>ビームを引き出し、必要に応じてエネルギー分析電磁石後方に置いたポストストリッパフォイル (20 µg/cm<sup>2</sup> C-foil) により、高価数のイオン (S<sup>10+</sup>, 11+, 13+) に変換した後、閻魔の散乱チェンバに導入する。散乱チェンバ内で、0.9, 1.1, 1.5, 2.0, 3.0, 4.7, 6.9, 10 µg/cm<sup>2</sup> の8種の膜厚の炭素薄膜を通過した後のビームを散乱角ゼロ度に設定した閻魔で電荷分離し、それぞれの収量をガスチェンバにより計数する。閻魔は四重極電磁石 Q, 二つの偏向電磁石 D ならびに三つの多重極電磁石 M を組み合わせた、Q-M1-D1-M2-D2-M3 の構成を持つ高分解能スペクトロメータである。本測定においては、D1-D2 電磁石により水平方向に電荷分離を行う際、初段の Q 電磁石を使用せず (磁場ゼロに設定)、M2 電磁石を性能上限まで使って水平方向への収束を行う (D 電磁石の入口境界補整用の M1 電磁石は標準値で、Q, M 電磁石補整用の M3 電磁石は磁場ゼロで使用) ことにより、64 MeV S<sup>9+</sup>ビームの隣接する4つ程

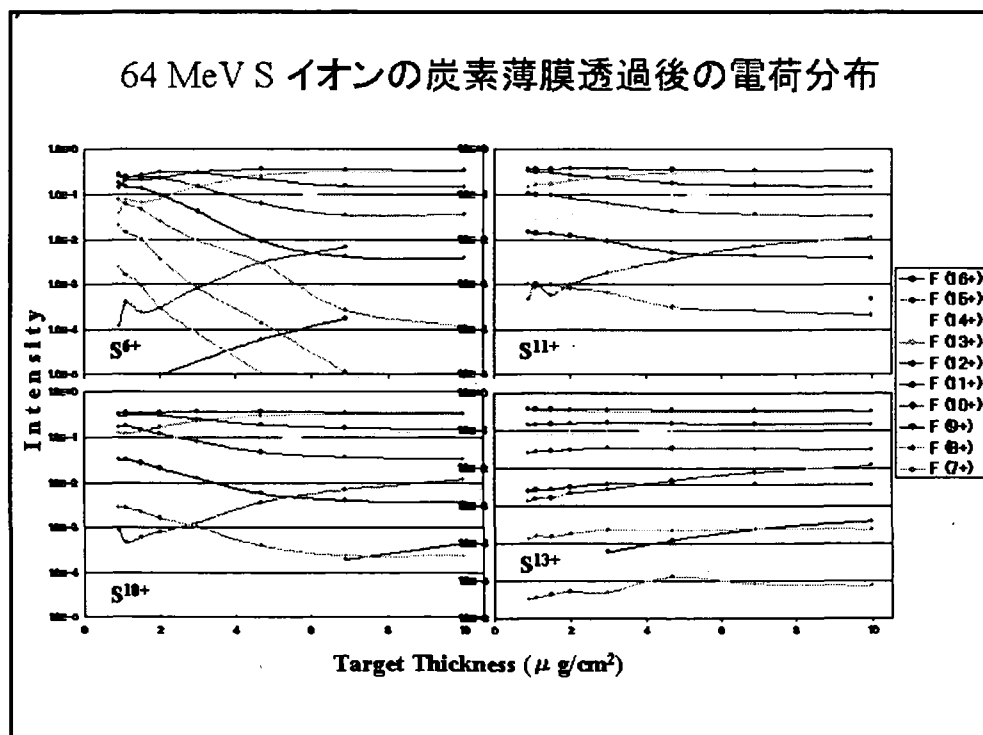
度の価数のビームを同時に、スペクトロメータ内での損失なく計数を行い、 $q=6-16$ の 11 価数にわたる炭素薄膜通過後電荷分布測定を行った。閻魔散乱チェンバならびにスペクトロメータ内は3台のターボ分子ポンプと2台のクライオポンプにより  $10^{-6}$  Pa 以下の高真空に保たれ、ターゲットなしでの測定により、残留ガスによる電荷変換反応を抑止できていることを確認済みである。(スライド3, 4)

結果と考察

スライド5に測定結果を示す。電荷分布比の誤差は、比の値が0.3程度るとき0.5%以下、 $1.0 \times 10^{-5}$ 程度るときで20%程度である。測定膜厚範囲で電荷分布が変化していく様子がよく見て取れる。最大膜厚  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  付近でも電荷分布は平衡には達しておらず、特に分布比の小さい価数はなかなか平衡に達しないこともわかる。この電荷分布より各膜厚における平均電荷と分布巾を求めた結果をスライド6に示す。電荷分布は平衡に達していないものの、その平均電荷と分布巾は膜厚  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  付近で概ね平衡に達し、その値は各々12.4と1.03となる。この結果は、Besenbacherらにより提唱 [6] された、電荷分布が平衡に達するために必要とされる膜厚を与える式

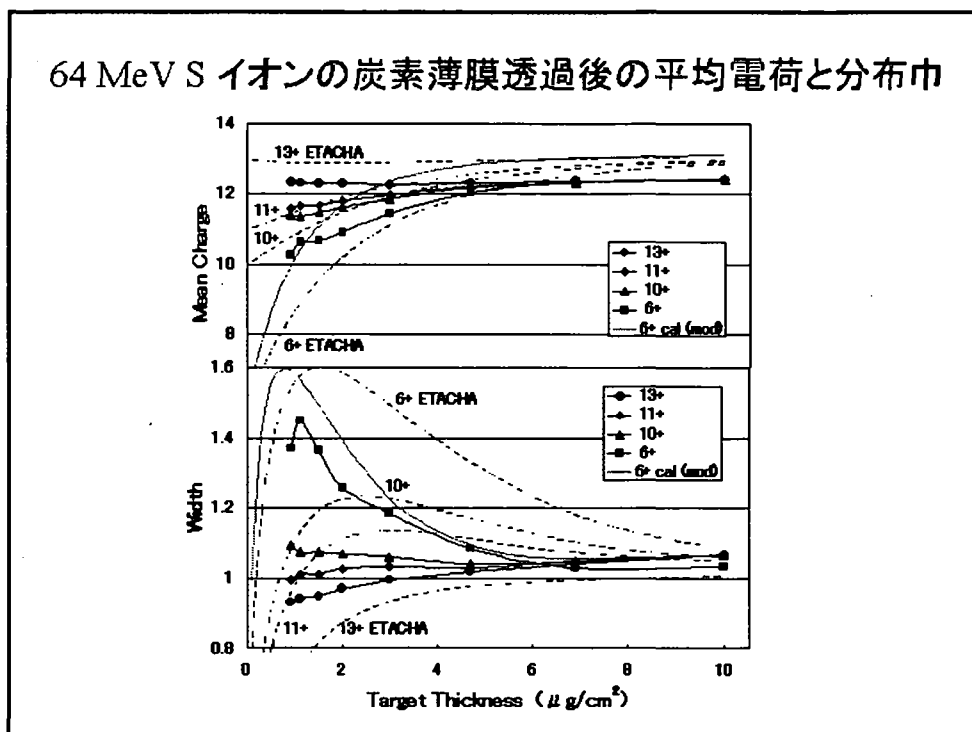
$$N\Delta R [\text{atoms}/\text{cm}^2] \geq 2 \times 10^{20} \frac{1}{Z_2} \left( \frac{E [\text{MeV}]}{Z_1 A_1 [\text{amu}]} \right)^2,$$

より得られる値  $10.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  と矛盾しない。ここで、式中の  $N$  と  $\Delta R$  はターゲットの原子密度と膜厚、 $Z_1, Z_2$  はそれぞれ入射イオンとターゲットの原子番号、 $A_1$  と  $E$  は入射イオンの質量数とエネルギー (MeV 単位) である。また、得られた平均電荷と分布巾を、これまでに提唱されてきた固体通過後のイオンの平衡平均電荷と分布巾を与える経験式と比較すると、表1のようになる。



スライド5

64 MeV S イオンの炭素薄膜透過後の平均電荷と分布巾



スライド6

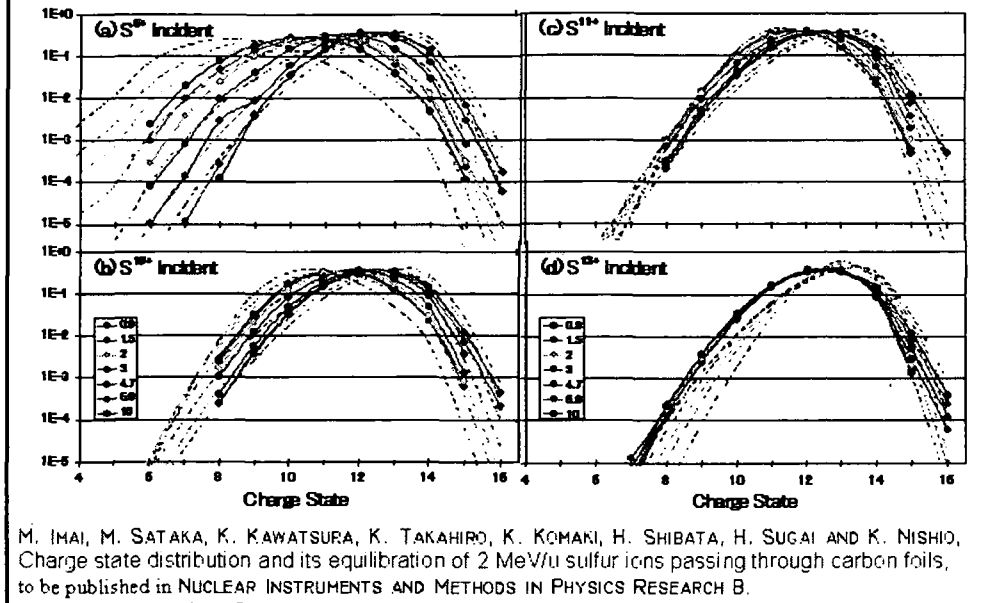
	平均電荷 $\bar{q}$	分布巾 $d$
本実験	12.4	1.03
Nikolaev and Dmitriev 半経験式 (1968) [1]	12.7	1.01
To and Drouin 経験式 (1976) [2]	12.7	-
Shima et al. 経験式 (1982) [3]	12.8	-
Schiwietz and Grande 経験式 (2001) [4]	12.6	1.06

表1 平均電荷  $\bar{q}$  と分布巾  $d$  本実験値と各種経験式による値

スライド6からは、 $S^{6+}$ 入射時の電荷分布巾が膜厚  $1.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  付近でいったん増加した後減少に転ずる傾向が見られる。これは、仏 GANIL において、タンデム領域よりはるかに高いエネルギー領域において、 $28.9 \text{ MeV}/u \text{ Pb}^{56+}$ イオンあるいは  $24.1 \text{ MeV}/u \text{ U}^{58+}$ イオンを炭素薄膜に透過させて測定 [7] された非平衡電荷分布巾に観測された傾向が、タンデムエネルギー領域でも観測されたことを意味する。

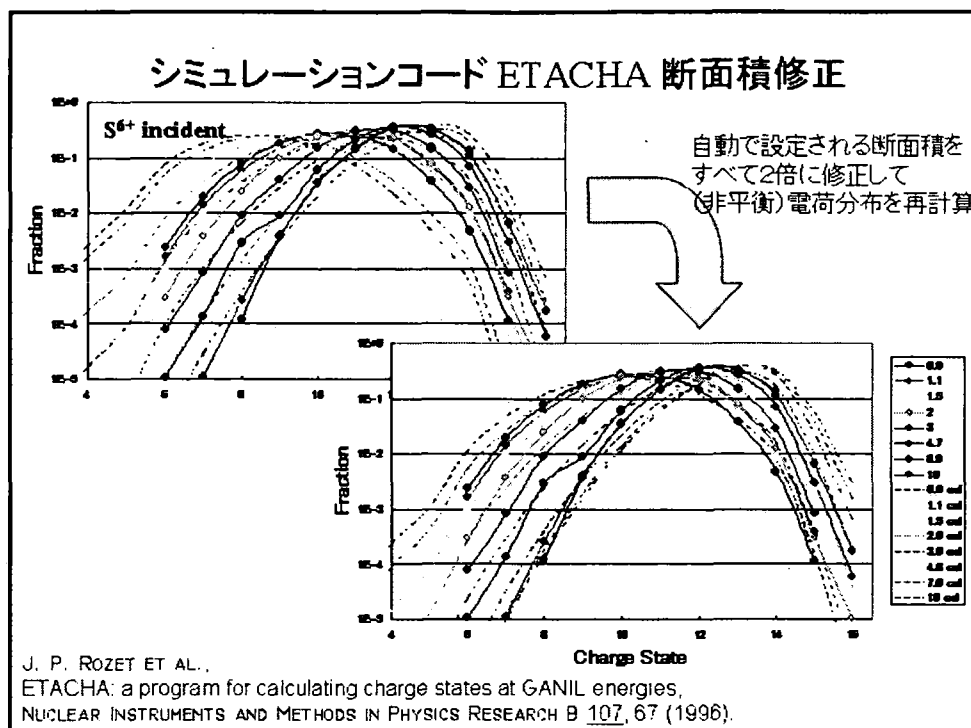
スライド5に示した電荷分布比を、横軸にイオン価数を取り、膜厚ごとにプロットしたものをスライド7に示す。(見やすさを考慮し膜厚  $1.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  のデータは省略してある) スライド6からも見て取れるが、 $S^{10+}$ ,  $S^{11+}$ ,  $S^{13+}$ 入射時の  $4.7 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上の膜厚での電荷分布 (平均電荷および分布巾) は、ほぼ一致し、 $S^{6+}$ 入射時の  $6.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上の膜厚での電荷分布もこれと一致する。この分布は、膜厚が増していくとき、低価数側の分布 (8-13+) はそのままとどまるのに対し、高価数側の分布 (14-16+) は高価数側に移動していく。これは、硫黄イオンのL殻電子が関わる過程は、 $\sim 5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  程度の膜厚で平衡に達しているのに対し、これ以上の膜厚での電荷平衡過程は、K殻電子が関わる過程、すなわちK殻電子損失やK殻電子励起に支配されていることを示唆する。

## 64 MeV S イオンの炭素薄膜透過後の電荷分布



## スライド7

スライド7中には、高エネルギー領域 ( $\geq 10$  MeV/u) で適用可能な電荷分布シミュレーションコード ETACHA [8] より得られた結果を点線で記した。このコードは、イオンの 1s, 2s, 2p, 3s, 3p, 3d の最大 28 電子の、ターゲットとの衝突による基底および励起状態への電子捕獲、基底および励起状態からの電子損失、電子励起および脱励起、さらに放射過程とオージェ過程による脱励起を考慮し、電荷変化を表す差分方程式を解くことにより、通過膜厚に対するイオン電荷分布を再現する。本コードは、固体膜通過に伴うエネルギー損失を考慮し、膜通過途中で断面積を修正していく機能も備えているが、ここでの計算はターゲット膜厚が十分薄く、この機能を用いる必要はない。ETACHA より得られた電荷分布から計算した平均電荷と分布巾をスライド6中にも点線で示す。ターゲット膜厚に対する平均電荷と分布巾の変化傾向はおおむね再現されているが、その膜厚に対する変化速度は実験より 2 倍程度遅く、(ほぼ) 平衡と見なせる  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  付近での平均電荷は、13.0 と実験値より 5% 大きな値となる。変化速度に関しては、コードが使用する反応断面積が実際の半分程度の値になっていることが考えられる。ETACHA の適用衝突エネルギーは本来もっと高いことから、コード内の衝突断面積計算では、電子捕獲過程は Eikonal 近似、電子損失過程についてはターゲットへの電子移行を無視してイオン化断面積を平面波近似ボルン近似 (PWBA) で水素様イオンに対する値を計算し、二電子以上を持つイオンに対しては水素様イオンの値を電荷スケールングすることで求めている。一般に衝突エネルギーが高くなると断面積は急速に減少することから、シミュレーションで使用する断面積が実際の半分程度となっているとの考察は妥当性を欠くものではなく、 $\text{S}^{6+}$  イオン入射のケースについて、コードが内部で使用する各種断面積値をすべて 2 倍に修正して再シミュレーションを行った結果をスライド8に示すとともに、この結果から求めた平均電荷と分布巾を、スライド6中に太実線で示す。平均電荷が高めに再現される傾向は変わらないが、膜厚に対する変化速度は平均電荷、分布巾ともに改善されている。



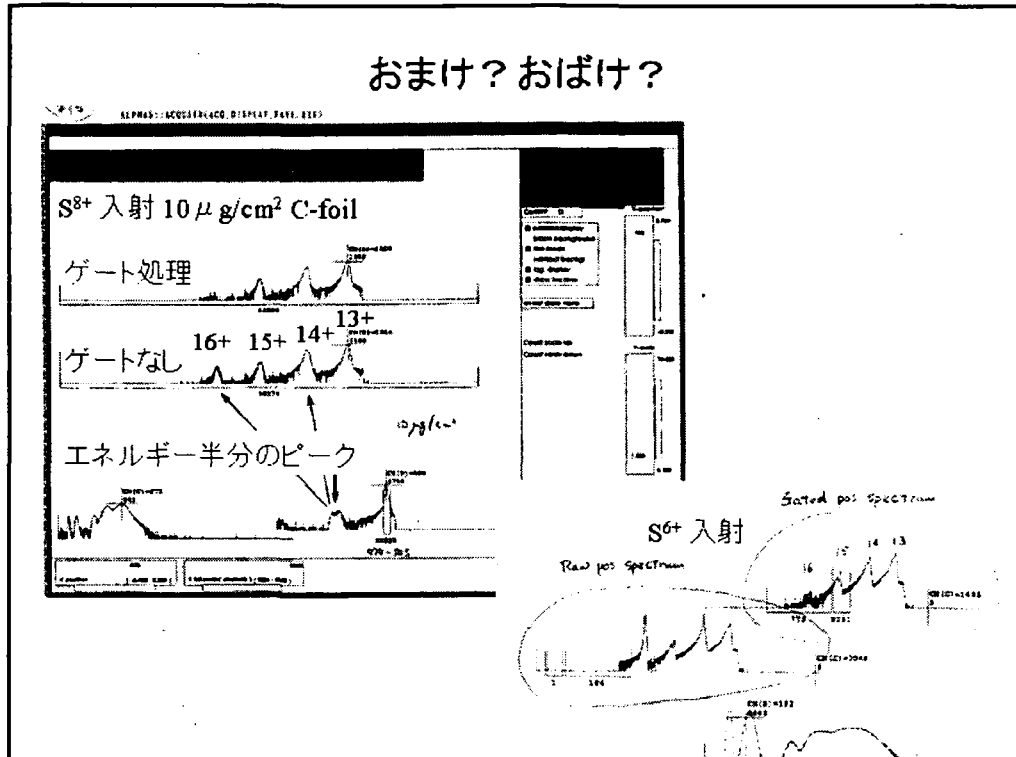
スライド 8

スライド 8 から、膜厚  $0.9\text{--}1.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  の電荷分布再現性が大きく改善されていることが見て取れる。以上の結果より、高エネルギー ( $\geq 10 \text{ MeV}/u$ ) 電荷分布計算コード ETACHA のタンデムエネルギー領域での適用性に関し、1) 内部で使用している断面積が実際より小さい (おおむね半分、特に L 殻が関わる過程) もの、衝突による基底および励起状態への電子捕獲、基底および励起状態からの電子損失、電子励起および脱励起、さらに放射過程とオージェ過程による脱励起を考慮するという仮定は有効である、2) 入射イオン電荷が平衡平均電荷に近い場合には電荷分布をよく再現する、3) 入射イオン電荷が平衡平均電荷から遠い場合でも断面積を修正することにより電荷分布の再現性が改善される、4) 平衡平均電荷が高めに再現される傾向があり、K 殻電子捕獲と損失のバランスが偏っているためと考えられる、ことがわかる。

### 酸素イオンの混入

スライド 4 中に、データ取得中の計算機の出力画面が示されている。4つのスペクトルの上2つは検出位置スペクトル (直線と対数プロット)、右下はエネルギー (ガスチェンバ内で S イオンはその全エネルギーを失う) スペクトルである。ところが、スライド 9 の  $\text{S}^{8+}$  イオン入射時の出力画面のエネルギースペクトルのように、本来のエネルギーピークの半分のエネルギーにピークが現れることが起こった。同様な現象は、 $\text{S}^{6+}, 14+$  など偶数価数の S イオン入射時に現れることがあるが、奇数価数入射時には現れない。また、この現象が生ずる時には、 $\text{S}^{16+}, 14+, 12+$  など偶数価数で検出されるイオン収量が、現象が生じない時に比べて増加する。検討の結果、このエネルギー半分のピークは、等速度の酸素イオン  $2.0 \text{ MeV}/u$  ( $32 \text{ MeV}$ )  $^{16}\text{O}^{3+, 4+, 7+}$  イオンが、 $2.0 \text{ MeV}/u$  ( $64 \text{ MeV}$ )  $^{32}\text{S}^{6+, 8+, 14+}$  イオンビームに混入しているためと判断した。薄膜透過後の収量異常も、電荷変換後の酸素イオンがその倍の価数の硫黄イオンと同位置に到達することに起因する。この酸素イオンは、イオン源で  $\text{O}_2^-$  負イオンとして発生したものが、タ

ンデム加速器中を硫黄イオンと同じパスを経て正イオンに変換されて加速されてきたものと推測できる。酸素イオン混入の影響を除くため、混入が確認された場合には、エネルギー弁別により硫黄イオンのみの収量を得てデータ処理を行った。



スライド9

## 謝辞

研究遂行にあたり、高エネルギー加速器研究機構片山一郎教授にスペクトロメトリーに関する、日本原子力研究所石井哲朗主任研究員にマルチパラメータリスト測定に関する助言をいただいた。また本稿最終章は、研究会において「酸素イオン混入の疑い」と発表したものを、発表後の討論と懇親会における交流により、「混入」と確認できたことに基づいている。コメントを頂戴した日本原子力研究所 加速器管理室 松田誠研究員、同物質科学研究部 鶴田薫博士研究員、理化学研究所 加速器基盤研究部 森田“113番”浩介先任研究員に、格別の謝意を表する。

## 参考文献

- [1] V. S. Nikolaev, I. S. Dmitriev, Phys. Lett. A **28** (1968) 277.
- [2] K. X. To, R. Drouin, Phys. Scr. **14** (1976) 277.
- [3] K. Shima, T. Ishihara, T. Mikumo, Nucl. Instr. and Meth. **200** (1982) 605.
- [4] G. Schiwietz, P. L. Grande, Nucl. Instr. and Meth. B **175-177** (2001) 125.
- [5] M. Sataka, M. Imai, K. Kawatsura, K. Komaki, H. Tawara, A. Vasilyev, U. I. Safronova, Phys. Rev. A **65** (2002) 052704.
- [6] F. Besenbacher, J. U. Andersen, E. Bonderup, Nucl. Instr. and Meth. **168** (1980) 1.
- [7] A. Leon, S. Melki, D. Lisfi, J. P. Grandin, P. Jardin, M. G. Suraud, A. Cassimi, At. Data Nucl. Data Tables **69** (1998) 217.
- [8] J. P. Rozet, C. Stéphan, D. Vernhet, Nucl. Instr. and Meth. B **107** (1996) 67.