

電子・重イオン衝撃によるC<sub>60</sub>分解・電離断面積

土田秀次\* 中井陽一† 伊藤秋男\*

## Abstract

高エネルギー電子・重イオン衝突によって誘起されたC<sub>60</sub>クラスターの電離・分解片イオンの入射粒子依存(Z<sub>1</sub>dependence)およびエネルギー依存の測定を行った。入射粒子は、電子(≤5keV)、重イオン(H<sup>+</sup>(0.2-2.5MeV)、C<sup>5+</sup>(15.6MeV)、O<sup>6+,7+</sup>(20.4MeV)、Si<sup>2+</sup>(0.8-4.0MeV))を用いた。H<sup>+</sup>入射ではC<sub>60</sub><sup>1+,2+</sup>の電離断面積を測定し、一次摂動によるplasmon励起断面積の理論計算と比較した。重イオン衝撃ではC<sub>n</sub><sup>1+</sup>(n≤12)分解片イオンの強度分布を調べた。また、C<sup>5+</sup>、O<sup>6+,7+</sup>入射では荷電変換衝突によるC<sub>60</sub>分解過程における分解片イオンの質量相関を同時測定法により調べた。

## 1 序論

近年、原子・分子と固体の中間的原子数を有するクラスターは、凝集系の物性解明のため盛んに研究がされている。クラスターは抵抗加熱法、コンタクト・アーク法、超音速ジェット法およびスパッタリング等で得られる。クラスターに関する物性研究は物理化学分野における半導体・超伝導の研究から宇宙物理における星間物質の研究等に互る幅広い分野で成されている。

衝突研究の分野においては、クラスターは標的及び入射粒子として用いられ、レーザーや荷電粒子との衝突反応の研究が行われている。C<sub>60</sub>フラーレンに関する研究では、レーザー、電子衝撃によるイオン化ポテンシャルの測定、電子や低速高電離イオンによる高電離C<sub>60</sub><sup>7+</sup>、C<sub>60</sub><sup>9+</sup>の観測等がされている[1,2]。Walch *et al*は低速Ar<sup>8+</sup>、Xe<sup>14+</sup>による電子捕獲過程で、捕獲電子数が増加するにつれ

低質量分解片イオン(C<sub>n</sub><sup>+</sup>(n=1-3))生成が支配的になる結果を観測している[3]。この時、電子捕獲断面積は4.4±1.8×10<sup>-14</sup>cm<sup>2</sup>とC<sub>60</sub>の幾何学的断面積(3.85×10<sup>-15</sup>cm<sup>2</sup>)より大きく、電子捕獲の衝突径数はC<sub>60</sub>の半径3.5Åよりはるかに大きい衝突径数(12Å)で起こっている。

低エネルギー衝突における電離・分解過程では、C<sub>60</sub>の電子状態が基底状態のままイオン化するソフトな衝突であるため、高電離C<sub>60</sub>イオンが比較的安定に存在できる。しかし、高い電離状態のC<sub>60</sub>イオンは、クーロン爆発により安定な低質量分解片イオンとなる。一方、高エネルギー荷電粒子との衝突では内殻電離など衝突径数の小さい非弾性衝突(deep-inelastic collision)が起こる。高エネルギー衝突によりC<sub>60</sub>は非常に不安定な高励起状態になり、低いイオン化状態(C<sub>60</sub><sup>q+</sup>(q≥3))でもmultifragmentationが起こる。高速イオンの荷電変換過程において、入射粒子の内殻に電子捕獲もしくは入射粒子の内殻電子が損失するときの衝突ではmultifragmentationのみが起こると考えられる。

本研究では高エネルギー非弾性衝突によるC<sub>60</sub>の電離・分解過程における次の研究を行った。

- C<sub>60</sub>分解の入射イオン種(電子、イオン)依存性
- H<sup>+</sup>によるC<sub>60</sub>電離断面積測定
- C<sub>n</sub><sup>1+</sup>(n≤12)分解片イオン強度のZ<sub>1</sub>依存性
- 荷電変換衝突における衝突径数依存および分解片イオンの質量相関

入射イオン種(電子、イオン)による衝突相互作用の違いは、電子衝撃では励起・電離のみが起こり、一方、イオン衝撃では励起・電離に加えて荷電変換過程も寄与するため断面積は入射電荷にも

\*京都大学大学院工学研究科原子核工学教室

†理化学研究所原子物理研究室

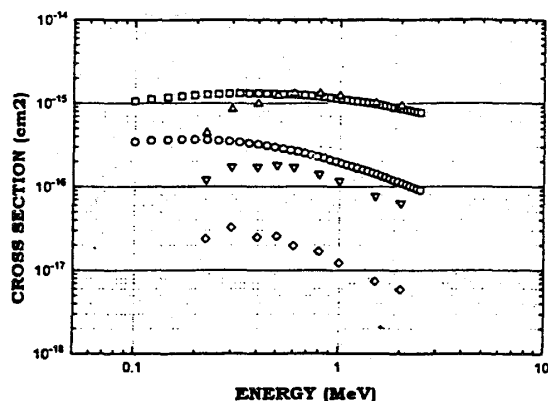


図 1:  $H^+$ による  $C_{60}$  電離断面積. □, ○は single, double plasmon 励起断面積の理論値、△, ▽, ◇は  $C_{60}^+$ ,  $C_{60}^{2+}$ ,  $C_{60}^{3+}$  の実験値を示す

依存すると考えられる。実験で得られた電離断面積は plasmon 励起断面積の理論計算と比較した。

## 2 実験

加速されたビームは幅  $50\text{ns}$ 、周期  $100\mu\text{s}$  のパルス電圧により chopping され、 $450\text{--}500^\circ\text{C}$  に加熱した  $C_{60}$  蒸気と  $90^\circ$  で交差衝突させる。イオンビームは京都大学工学部原子核工学教室  $1.7\text{MV}$  タンデトロロン加速器 ( $H^+$ ,  $Si^{2+}$ ) 及び理化学研究所線形加速器 (重イオンリニアック) ( $C^{5+}$ ,  $O^{6+,7+}$ ) を用いた。また、電子ビームは最大  $5\text{keV}$  まで加速できる電子銃を用いた。生成されたイオンは  $90^\circ$  方向に 2 段階加速飛行時間法により質量・電荷分析され MCP で検出し TAC で計測する。荷電変換衝突では入射粒子の終電荷と生成イオンの同時測定を行い multi-hit mode で計測した。 $q$  価イオンの全加速エネルギーは  $4.6q\text{--}4.9q\text{keV}$  で、 $4.9\text{keV}$  での MCP 検出効率は  $C_{60}^+$ ,  $C_{60}^{2+}$  イオンに対し  $36\%$ 、 $81\%$  である [3]。標的密度は Abrefah *et al* の蒸気圧データをを用い、 $450^\circ\text{C}$  における衝突領域での密度は約  $7.33 \times 10^9$  (個/ $\text{cm}^3$ ) である [4]。チェンバー真空度は  $3.0 \times 10^{-7}$  Torr、ビームは 2D-slit で  $2 \times 2\text{mm}^2$  にコリメートし衝突領域でのビーム量は  $50\text{nA}$  であった。

## 3 結果と考察

### 3.1 $C_{60}$ 電離断面積

図 1 は、 $H^+$   $0.2\text{--}2.0\text{MeV}$  による  $C_{60}^{(1-3+)}$  の電離断面積を示す。絶対値測定は現状難しいため、図では実験値と理論値をフィッティングした。また、図 2 に示すように、1 価に対する 2 価の断面積比は理論値と定量的一致が得られている。 $C_{60}^+$ ,  $C_{60}^{2+}$ ,  $C_{60}^{3+}$  の電離断面積の最大値を与えるエネルギーはそれぞれ  $0.6$ ,  $0.4$ ,  $0.3\text{MeV}$  とイオンの価数が増えるにつれ低エネルギー側にシフトしている。この傾向は原子衝突における直接電離過程の断面積と全く逆の傾向である。Dünser *et al* の  $0.1\text{--}1\text{keV}$  電子照射による  $C_{60}$  の電離断面積は断面積の最大値は高エネルギー側にシフトする結果が得られおり、これは直接電離過程によるものと考えられ、重イオン衝撃とは異なっている [5]。LeBrun *et al* は  $400\text{--}625\text{MeV}$  の  $Xe^{18+}$  における  $C_{60}^+$  の電離断面積の測定を行い、single plasmon 励起による理論計算と比較しよい一致を得ている [6]。

我々は  $C_{60}^{2+}$  の生成機構として double plasmon 励起を仮定して理論計算を行い、1 価と 2 価の電離断面積のピークシフトを調べた。一次摂動による plasmon 励起断面積は

$$\sigma_{1pl} = 2\pi \int_0^\infty db b N(b) \exp[-N(b)] \quad (1)$$

$$\sigma_{2pl} = 2\pi \int_0^\infty db b \frac{(N(b))^2}{2} \exp[-N(b)] \quad (2)$$

と表される。式 (1), (2) はそれぞれ、single, double plasmon 励起断面積で、励起確率として  $N(b)$  の Poisson 分布を仮定している。 $N(b)$  は plasmon の励起数で次式で表される [6]。

$$N(b) = \int_0^\infty dE \frac{f(E)}{E} \frac{2\pi Z_p^2 e^4}{mv^2} \frac{1}{b^2} \times \left(\frac{Eb}{v}\right)^2 \left[ K_0^2 \left(\frac{Eb}{v}\right) + K_1^2 \left(\frac{Eb}{v}\right) \right] \quad (3)$$

ここで、 $Z_p$ ,  $b$ ,  $v$  はそれぞれ、入射粒子の価数、衝突径数、衝突相対速度で、 $K_0$ ,  $K_1$  は Bessel 関数である。 $f(E)$  は  $C_{60}$  の oscillator strength distribution で次式で与えられる [7]。

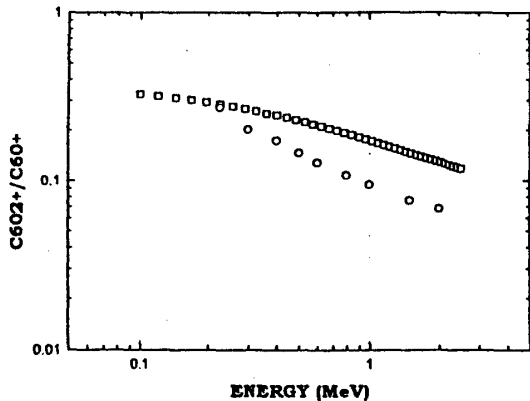


図 2:  $C_{60}^{2+}/C_{60}^{1+}$  の電離断面積比. □ は理論値、○ は実験値を示す

$$f(E) = \frac{.71}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(E-20)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (4)$$

ここで、 $\sigma=10\text{eV}$ である。

図2の□、○は $H^+$ のsingle、double plasmon 励起断面積の計算値である。それぞれの励起断面積のピーク値は0.4、0.2MeVで低エネルギー側にシフトしているのが分かる。このピークシフトをMassey's criterion から考察すると、同速度でのsingle plasmon の励起確率  $P_1(b) = N(b)\exp[-N(b)]$  の最大値を与える衝突径数  $b$  は、double plasmon の  $P_2(b) = \frac{(N(b))^2}{2}\exp[-N(b)]$  の最大値を与える衝突径数  $b$  に比べて大きいことから、断面積の最大値を与えるエネルギーが低エネルギー側にずれることが定性的に理解できる。

### 3.2 Multifragmentation の入射粒子-エネルギー依存性

高速荷電粒子による  $C_{60}$  の multifragmentation は電子、陽子のような  $Z_1 = 1$  の入射粒子では起こらない。これは、 $Z_1$  が小さい入射粒子では多重励起・電離断面積が非常に小さいことから理解できる。また、分解片イオンの質量分布においては  $Z_1$  が増加するにつれ、より低質量分解片イオン生成が顕著になることが得られている [8]。高速荷電粒子衝突における multifragmentation は、 $C_{60}$  を高電離状態にするよりむしろ高励起状態する過程が重要な役割を演じる。

図3は0.8-4.0MeV  $Si^{2+}$  入射での分解片イオンの  $C_n^+$  に対する強度比を示す。入射エネルギーが

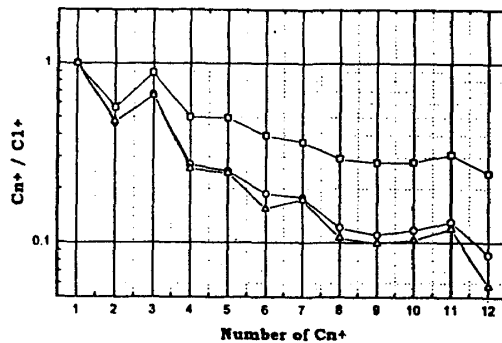


図 3:  $Si^{2+}$  による  $C_n^+$  の強度比. □(0.8MeV)、○(2.0MeV)、△(4.0MeV)

増加するにつれ多重分解が顕著になっていることが分かる。振動構造は中性クラスターに対する1原子当たりの結合エネルギーと対応しており、クラスターの安定性を示している。

### 3.3 荷電変換衝突

$C^{5+}$ 、 $O^{6+,7+}$  入射による荷電変換衝突では衝突径数が非常に小さいK殻電子に関する衝突過程が起こる。multi-fit TACを用いた  $C^{5+}$  の1電子捕獲・損失過程では multifragmentation のみが起こり、 $C_{60}$  の電離イオンは観測されなかった。また、 $O^{6+,7+}$  の1電子捕獲・損失過程でも同様な結果が得られている。

図4は  $O^{6+,7+}$  による分解片イオンの強度比を示す。7価入射による1電子捕獲・損失過程の分解片強度比が同じ傾向を示している。一般に電子捕獲・損失での衝突径数は電子損失過程の方が小さい。すると、7価入射の場合、1電子損失過程での分解イオンの強度比は1電子捕獲過程より、強度比は急な指数関数的減衰を示すと考えられる。この実験で得られている分解片生成断面積は、電子捕獲と電子損失断面積は同程度の寄与しているか、もしくは、励起・電離からの寄与が主要因であることが考えられる。

低質量分解片イオンの質量相関は、非常に対称性がよい、すなわち、 $C_1^+$  とコインシデンスする相手は  $C_2^+$ 、 $C_3^+$ 、 $C_4^+$  等のイオンであり、 $C_{11}^+$  とコインシデンスする相手は  $C_8^+$ 、 $C_9^+$ 、 $C_{10}^+$  等の質量の大きい分解片イオンである。このような分解片イオンの質量相関の研究は evaporation による  $C_2$ 、

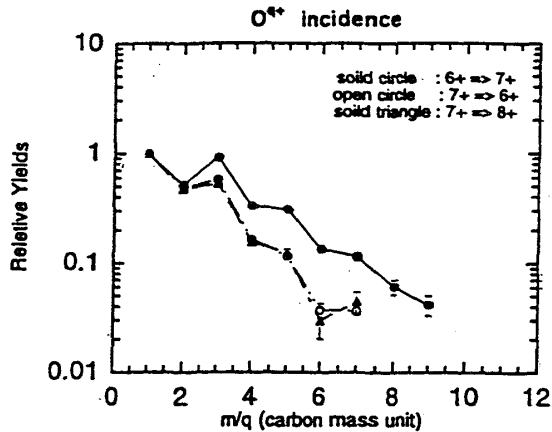


図 4:  $O^{6+,7+}$  荷電変換衝突による  $C_n^+$  の強度比

$C_4$  損失する高質量分解片イオンの生成機構やクラスターイオンの安定性を議論する上で重要であり今後さらに研究が必要である。

## 4 まとめ

高エネルギー重イオンによる  $C_{60}$  電離断面積において、1価、2価電離機構は plasmon 励起で説明できる。しかし、直接電離過程によるイオン化機構も考えられるため検討が必要である。また、荷電変換による分解機構の解明等、原子・分子衝突では見られないクラスター特有の現象も興味ある研究である。高エネルギー衝突での分解機構における入射粒子及びエネルギー依存性は標的高励起状態の生成機構より定性的評価ができ、低エネルギー衝突では起こらない分解機構が測定されている。クラスター分解で重要な evaporation、multifragmentation での分解片質量相関はさらに研究する必要がある。また、中性分解片の観測も必要であろう。内殻電離過程の解明において、クラスター衝突で不明な衝突径数を明らかにするためにクラスターからの Auger 電子との同時測定等の研究は非常に重要と思われる。

## 参考文献

- [1] P. Scheier and T. D. Märk, Phys. Rev. Lett. **73**, 54 (1994)
- [2] Jian Jin *et al*, Phys. Rev. A **53**, 615 (1996)

- [3] B. Walch *et al*, Phys. Rev. Lett. **72** 1439 (1994)
- [4] J. Abrefah *et al*, Appl. Phys. Lett. **60**, 1313 (1992)
- [5] B. Dünser *et al*, Phys. Rev. Lett. **74** 3364 (1995)
- [6] T. LeBrun *et al*, Phys. Rev. Lett. **72** 3965 (1994)
- [7] G. F. Bertsch *et al*, Phys. Rev. Lett. **67** 2690 (1991)
- [8] A. Itoh, XIX ICPEAC (1995)