

氏 名	つち だ ひで つぐ 土 田 秀 次
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 2007 号
学位授与の日付	平 成 13 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 原 子 核 工 学 専 攻
学位論文題目	高速イオンによる C ₆₀ 分子の衝突反応素過程に関する研究

論文調査委員 (主 査) 教 授 伊 藤 秋 男 教 授 今 西 信 嗣 教 授 木 村 健 二

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、放射線照射下におけるカーボン60分子の電子的励起とその緩和機構の解明を目的に、電子やイオンなどの高速荷電粒子をプローブとした一連の実験的研究の成果をまとめたものであり、9章からなる。

第1章は序論であり、炭素同素体としての新しい形態である C₆₀ フラーレンの特徴と、原子・分子並びに固体などのミクロ物性を研究する上での高速荷電粒子衝突法の特長、特に衝突反応過程の動的機構を解明する上での有力性について論じている。次に、本研究課題を取り上げる背景となった C₆₀ に関する世界の研究の現状について述べ、解決すべき課題、特に衝突におけるエネルギー付与機構と衝突後の緩和機構の解明の重要性について述べている。最後に本論文の目的と概要について述べている。

第2章は実験方法について述べている。本研究では電子や重イオンなど各種荷電粒子の衝突によって C₆₀ 標的から生成される二次イオンを飛行時間 (TOF) 法を用いて測定しており、まず TOF の測定原理について述べ、次に同時測定を行うために採用した3種類のスタート信号 (パルス化された入射ビーム、衝突後の特定の電荷状態にある散乱ビーム、二次電子) を用いた測定法について記述している。次に、気相の C₆₀ 標的の作成法および圧力値の評価を行っている。最後に、二次イオン検出器の検出効率の測定について述べている。

第3章は 0.4keV~5keV の電子衝撃による C₆₀ の電離・分解断面積について論じている。1重電離断面積が C₆₀ の幾何学的断面積と同程度であること、入射エネルギーの増加と共に単調減少すること、並びにそのエネルギー依存性が量子論的並びに半経験的電離公式からの計算結果によく合致することを見出ししている。更に、多重電離が価電子の直接電離によるものであり、内殻電離過程が無視できることを明らかにしている。

第4章は 0.2~2 MeV の H⁺ による電離・分解断面積について述べ、高速度領域では同速度の電子衝撃の値に一致することを見出ししている。一方、0.3~0.6MeV 領域にプラトー構造を見出し、これを複数のイオン化チャンネルの重畳の結果であると結論している。ボルン近似を基にしたモデル計算を実行し、電離の要因のひとつとしてプラズモン励起機構を新たに提唱している。更に、分解断面積のエネルギー依存性を解析することによって、C₂ 蒸発過程における新たな崩壊様式を提唱している。

第5章は 2MeV Si イオン衝突による電離・分解過程の詳細について論じており、以下の結論を得ている。

- C_{1,2,3}⁺ 等の小サイズイオン片の初期運動エネルギーは 0.85~6eV であり、その生成は高電離 C₆₀ イオンからの分解である。一方、C_{56,58}⁺ 等の重いイオン片 (~0.04eV) は中性の炭素クラスター放出によって生成される。
- 同時放出される複数のイオン片同士の相關測定の結果、隣接するサイズ同士が最も良く相關し、更にマジック数 (3, 7, 9) サイズのイオン片に主として崩壊する。
- 電離や多重分解に伴って放出される二次電子のエネルギーはイオン片の種類に依存して異なり、電子励起過程は夫々異なる。

d) 電子損失過程では C_{60} の多重分解過程が支配的であり、電子捕獲衝突では主として電離イオンが生成される。

第6章はH, Li, B, O, Si, Ag, Auの重イオン照射による電離・分解過程について述べている。先ず、多重電離に加え $C_{1,2}^+$ 生成など多重分解過程が支配的になることを見出し、次に、入射イオンの原子番号をはじめ、イオン片のサイズ分布を決定づける要因を詳細に検討し、衝突によって付与される分子の内部励起エネルギーに支配されることを定量的に明らかにしている。

第7章は中性を含む $2MeV Li^{0-3+}$ イオンによる電子捕獲・損失過程に伴う電離・分解過程について述べている。特に、イオン片生成断面積が C_{60} の幾何学的断面積より遙かに小さく、衝突反応が C_{60} 内部通過によるものであることを実証している。また、荷電凍結モデルに立ったエネルギー付与量の計算を実行し、多重分解の度合いを統一的に説明することに成功している。

第8章は1個の C_{60} 分子と炭素薄膜の類似性について論じている。まず、実際の炭素薄膜を用いて1~6MeVのLiイオンの平衡電荷分布を測定し、このエネルギー領域での新しいスケーリング則を導出している。更に、 C_{60} の分解イオン片生成断面積を用いて分子を貫通したイオンの終電荷分布の見積もりを行ない、 C_{60} 単分子が厚い気体標的と同等であること、更に、薄い炭素薄膜にもほぼ同等であることを実証している。

第9章は総括であり、本論文で得られた成果について要約している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、新しい半導体素材として期待されているカーボン60分子の放射線照射下における電子的励起とその緩和機構の解明を目的に、様々な高速荷電粒子をプローブとした一連の実験的研究をまとめたものであり、その主な成果は以下のとおりである。

1) 電子や陽子などクーロン力の弱い荷電粒子照射では、1~4個の多重電離と偶数個の中性 C_2 蒸発が主たる緩和過程であることを明らかにし、広範囲の入射エネルギー(0.4~5keV電子, 0.2~2.0MeV陽子)について電離断面積並びに C_2 蒸発断面積の絶対値を得ている。それらの実験値とボルン近似を基にしたモデル計算値との比較から、電離を引き起こす要因としてプラズモン励起機構を新たに提唱している。更に、 C_2 蒸発過程における新たな崩壊様式を提唱している。

2) MeV領域重イオン(Li, B, O, Si, Ag, Au)照射においては、多重電離に加え C_1^+ や C_2^+ の生成など多重分解過程が支配的になることを見出した。分解イオン片のサイズ分布を決定する要因を多面的に検討し、衝突によって付与される分子の内部励起エネルギーにイオン片分布が支配されることを定量的に明らかにしている。

3) 種々のコインシデンス測定法を用いることによって、電離・分解を誘引する個々の非弾性衝突機構の詳細を明らかにしている。まず、分解イオン片同士の相関を調べ、隣接するクラスターサイズ同士が最も相関すること、更にマジック数サイズのイオン片に高い確度で崩壊することを見出した。更に、中性を含む高速粒子による電子捕獲・損失過程に伴う電離・分解過程においては、荷電凍結モデルに立ったエネルギー付与量の計算を行ない、多重分解の度合いを統一的に説明している。

4) 膜厚の異なる数種の炭素薄膜を用いてMeV領域のLiイオンの平衡電荷分布を測定し、このエネルギー領域での新しいスケーリング則を導出している。更に、孤立 C_{60} 分子の分解イオン片生成断面積を用いて C_{60} 分子を貫通したイオンの終電荷分布の導出を行ない、 C_{60} 単分子が炭素超薄膜に同等であることを実証している。

以上要するに本論文は、電子やイオンなどの高速荷電粒子による C_{60} 分子の励起・電離・電子捕獲過程等を経て崩壊に至る一連の衝突現象を包括的に解析することによって、これまで不明であった多原子分子への衝突エネルギー付与機構とその緩和過程の詳細を明らかにしたもので、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成13年1月19日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行なった結果、合格と認めた。