

重イオン衝撃による放出炭素クラスターの質量・エネルギー分布

本城義夫, 溝田武志, 友久保彦, 栗田哲郎, 富田成夫, 李相茂

筑波大物理

アモルファス-, C₆₀-, C₇₀-薄膜を標的にし 50～100 MeV の重イオンビームを照射することによる Plasma Desorption Mass Spectrometry(PDMS) を用いて, 標的からのクラスターイオンなどの生成を研究した。このエネルギー領域の重イオンビームが入射した固体にエネルギーを与える機構は電子的阻止能 (図1) と呼ばれる。電子的阻止能によって入射イオンのエネルギーは固体中の電子に与えられる。この結果としてクラスターなどが生成するが, 電子に与えられたエネルギーがどのようにしてクラスター放出に結び付くのか未だ理解されておらず, 非常に興味を持たれている。

実験は筑波大のタンデム加速器からの 50～100 MeV 重イオンビーム (Ni, Ag, I, ...) を用いて行った。標的の C₆₀, C₇₀, アモルファスカーボン は厚さ 50 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ を aluminized mylar 膜上に蒸着した。放出クラスターの質量分析には飛行時間法を用いた。また, 10 個以上のクラスターを同時に質量分析するために multi-stop TDC を用いた (図2)。グリッドと標的の間に ~10kV の引き出し電場をかけてクラスターを加速し引き出した。

得られたクラスターイオンのスペクトル (図3) はどれも C₃₄H_n⁺, C_mH_n⁺ (m=3~5) が目立って大きいピークを作っていたが, C₆₀ と C₇₀ の標的からは C₆₀±2n, C₇₀±2n, C_m⁺ (m=10~30) が目立ち, アモルファスカーボンにはそれらのピークがない。

放出クラスターイオンの初速分布を測る実験も行った。この実験では double grid system (図4) を用いて, 初速の分布を飛行時間 t の分布の形にして測定した。このときクラスターの飛行時間 t は次のように表わされる。

$$t = t_1 + t_2,$$

$$t_1 = \sqrt{\frac{m}{2}} \cdot \frac{2a_1}{dU} \left(\sqrt{E_0 + dU} - \sqrt{E_0} \right) \propto \frac{a_1}{\sqrt{dU}}$$

$$t_2 = \sqrt{\frac{m}{2}} \cdot \left(\frac{2a_2}{U_g - U_0} \left(\sqrt{E_0 + U_t - U_0} - \sqrt{E_0 + dU} \right) + \frac{d}{\sqrt{E_0 + U_t - U_0}} \right) \propto \frac{d}{\sqrt{E_0 + U_t - U_0}}.$$

代表的な値は $dU \sim 800\text{V}$, $U_t \sim 6.7\text{kV}$, $U_0 \sim -2.3\text{kV}$ である。得られた初速 E_0 の分布は Maxwellian 分布を示した。

$$\frac{dY}{dE_0} = AE_0^c \cdot \exp\left(-\frac{E_0}{kT}\right) + \text{const.}$$

ここから各々のクラスターイオン放出時の温度が得られた。水素クラスター(Hn^+)の温度は $\sim 5\text{eV}$ と高く、炭素クラスター(CnHm^+ , C60^+ , C70^+)は $\sim 1\text{eV}$ と低い温度が得られた(図5)。また、このとき $c \sim 1$ であった。

重イオンビームの貫通した後の固体中には、阻止能によって高いエネルギーを与えられ励起されるホット-スポットがある。ここが局所的に熱平衡に達しているか、少なくとも固体中の炭素クラスターが乱雑な運動をしている熱いプラズマ領域だろう。この状態は非常に短い間に温度 kT の熱浴になり、そして膨張し冷えて行く。標的表面から水素クラスターが早い段階にプラズマで熱くなり放出される。したがって、その初速エネルギーは重い二次イオンに比べて高く $\sim 5\text{eV}$ である。重イオンビームとの反応で破壊された炭素クラスター Cn^+ ($n=10\sim 30$, ~ 58) は、熱浴の膨張冷却過程のときにクラスターどうしの多重衝突を通じて成長をし、低い温度 $\sim 1\text{eV}$ で炭素クラスターとして生成され放出に至る。このとき炭素クラスター Cn^+ ($n=10\sim 30$) の収量 Y_n には次の関係があった(図6)。

$$Y_n = K \cdot \exp(-a \cdot n) \quad a=0.17$$

$\text{C60} \pm 2n$, $\text{C70} \pm 2n$ の生成には非破壊の fullerene がもとになりふたつの過程がある。 C60 , C70 より軽いものは統計的に多段階 C2 崩壊で作られ、重いものは多段階の C2 捕獲で作られる。また $\text{C60} \pm 2n$, $\text{C70} \pm 2n$ の温度が軽いクラスターと同じ $\sim 1\text{eV}$ であることから同じ温度領域で生成したと考えられる。

二次イオン収量率の阻止能依存性を調べると、二次イオン収量率 Y , 阻止能 S として、データは全て

$$Y = c \cdot S^m \quad (m=1, 1.5, 2)$$

の関数形でフィッティングできた。これを説明するためにクラスターイオンの生成について現象論に基づいた仮説を採用した。イオントラックにおいてあるエネル

ギー密度 ϵ を与える面積 A の関係から

$$\epsilon \cdot A = \epsilon \cdot \pi \cdot R^2 = S$$

$$\therefore R = c \cdot S^{0.5}$$

このとき、二次イオンの収量率は全て

$$Y = S^m$$

の形にかける。二次イオン放出に預かる領域によって体積に比例する場合、面積に比例、面積・時間に比例する場合に分ける。二次イオンの収量率をこれら領域の大きさに比例するものと考え、次のようになる。

体積型。 $Y = c \cdot R^3 = c \cdot S^{1.5}$

面積型。 $Y = c \cdot R^2 = c \cdot S^1$

また、時間にも比例するときは、熱拡散が拡散方程式で表せるとき $t \sim R^2$ だから、

面積・時間型。 $Y = c \cdot R^2 \cdot t = c \cdot R^4 = c \cdot S^2$ である。

fullerene と炭素クラスターイオンの放出形態は阻止能の自乗に比例するこの型である。放出形態が同様であることは、 C_{60-2n} 、 C_{70-2n} が軽いクラスターと同じ領域で生成したと考えられることと整合する。炭素クラスターイオン生成についてまとめると次の三つの生成機構があることが分かった。炭素クラスターは温度が $\sim 2\text{eV}$ と低い、これはホットコアが膨張し冷却され多重衝突をかさねてから生成、放出に至る機構であるためである。 C_{60} と C_{70} の標的からの C_{60-2n} 、 C_{70-2n} は fullerene の C_2 -loss によるもの。また、 C_{60+2n} 、 C_{70+2n} は fullerene が C_2 -capture してできたものと考えられる。このことを明らかにするために、炭素クラスター生成に関するダイナミカルなシミュレーション計算を進めている。

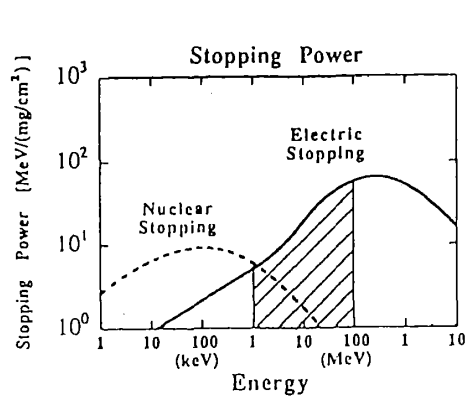


図1. 重イオンと物質の阻止能

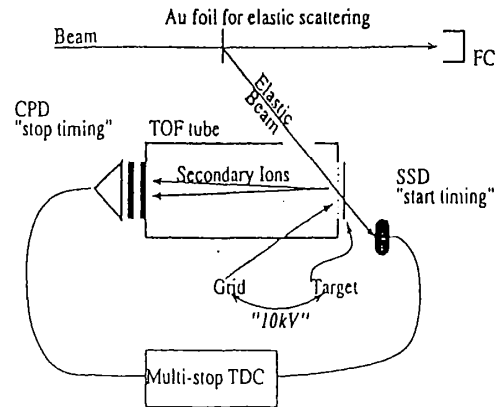


図2. 飛行時間質量法セットアップ

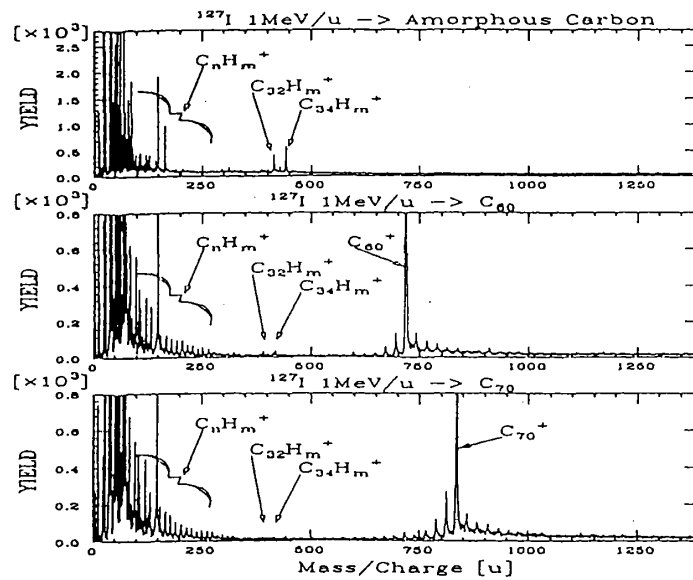
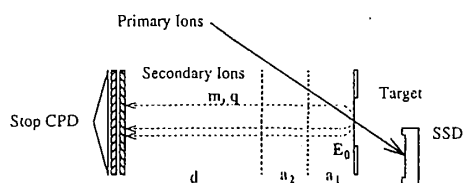


図3. PDMSの質量スペクトル

Experimental Set-up (double grids)



Potential

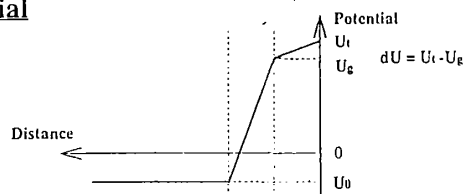


図 4 . double grid system (初速度分析)

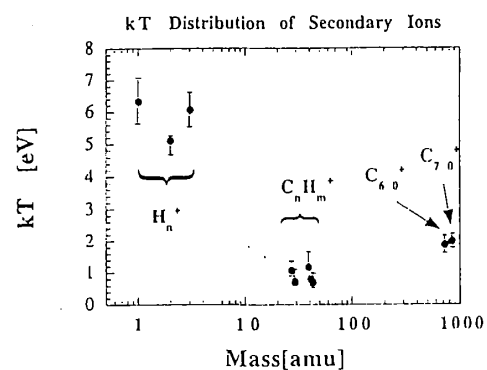


図 5 . クラスターの温度 (kT) 分布

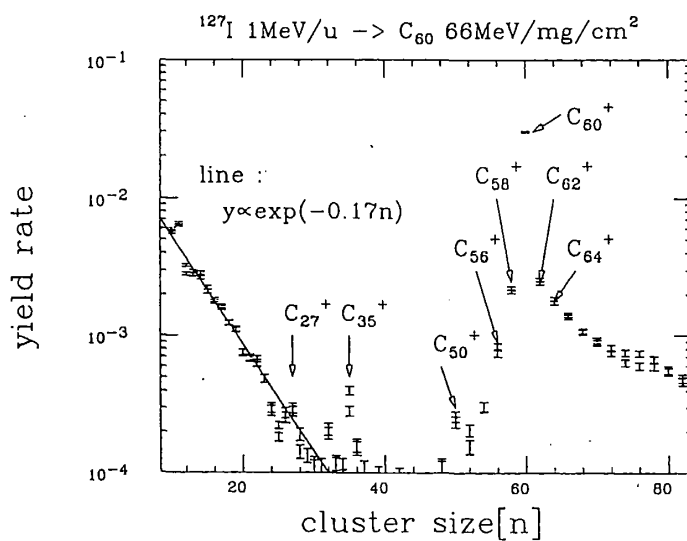


図 6 . PDMS の質量スペクトル