# クラスタービーム照射・計測技術の開発 Development of Cluster-Ion Irradiation and Measurement

千葉敦也,山田圭介,平野貴美,鳴海一雅#,斎藤勇一 Atsuya Chiba, Keisuke Yamada, Yoshimi Hirano, Kazumasa Narumi <sup>#</sup>, Yuichi Saitoh Takasaki Advanced Radiation Research Institute, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST)

#### Abstract

A swift  $C_{60}$ -ion microbeam system and a sputtering-yield measurement system with the use of a quartz-crystal microbalance technique have been developed. Both systems are for application use of swift cluster-ion beams: The former is for molecular imaging in combination with the secondary-ion mass spectrometry. The latter is for the measurement of sputtering yields, which are one of the fundamental physical quantities for application use of ion beams. The current status of those developments is reported.

Keyword: swift cluster-ion beams, C60-ion beams, microbeams, sputtering

### 1. はじめに

高速クラスターイオンビームは、様々な分野での 応用が期待され、欧州をはじめとする世界の加速器 施設において開発が進められてきた。近年、我々の 技術開発を基に高強度・高品質の高速クラスターイ オンビームの利用が可能になり、これまで実施困難 だった応用研究への展開が見え始めている。連携重 点研究における我々の課題では、量子科学技術研究 開発機構高崎量子応用研究所イオン照射研究施設 (TIARA)および京大・筑波大の加速器施設のC<sub>60</sub>を 含む高速クラスターイオンビームを用いて、生命科 学、表面・界面科学に関連する世界初となる応用研 究ならびにそれを支えるデータベースの構築を行う

ことを目的としている。この目的の下、我々のサブ グループでは、C<sub>60</sub>イオンビームの高エネルギー化、 マイクロビーム化に関わる技術開発を行うとともに、 高速クラスターイオンビームの応用研究に必要な諸 量のデータベース構築に資するべく、物質へのエネ ルギー付与量と密接に関係するスパッタリング収量、 二次電子収量の系統的な測定を行う。本報告では、 高速 C<sub>60</sub>イオンマイクロビームの開発の進捗状況と、



Figure 1. Frequency change due to Au sputtering by 120-keV  $C_{60}^+$  bombardment.

#narumi.kazumasa@qst.go.jp

スパッタリング収量の測定に向けた測定装置構築に ついて報告する。

#### 2. スパッタリング収量測定装置の構築

水晶振動子微量天秤法を用いたスパッタリング収 量測定装置を構築した<sup>[1]</sup>。水晶振動子の固有周波数 は結晶表面が接する媒質(電極)の質量変化に応じ て変化する。この電極にイオンを照射するとスパッ タリングによって質量が減少するので、イオン照射 に伴う周波数変化からスパッタリング収量が得られ る。ここでは、水晶振動子を用いた検出器、モニタ 一装置は市販のものを利用し、イオンビームに対す る検出器の位置調整、ビームの形状・強度分布がモ ニターできるようにしたスパッタリング収量測定装 置を構築した。

測定結果の一例をFig.1に示す。TIARAのイオン



Figure 2. Frequency shifts observed after the stop of irradiation as a function of the beam power. Solid lines, which are the results of the least squares method, indicate that the frequency shifts are proportional to the beam power.

注入装置からの 120 keV C<sub>60</sub>+ビームを金薄膜に照射 した結果である。水晶振動子の電極用に蒸着されて いる金薄膜をそのまま標的として用いた。イオンビ ームを照射すると水晶振動子の固有周波数が増加し、 その変化は照射時間にほぼ比例すること、さらに照 射を停止すると変化が止まることから、C<sub>60</sub>+ビーム の照射によって金薄膜がスパッターされ、それによ る質量変化を反映していることがわかる。

一方、このような周波数変化に加えて、照射を停 止した直後に周波数が緩やかに減少し、数十秒後に 定常状態に落ち着く変化が観測された。照射開始直 後には同様だが逆方向の変化が認められることから、 スパッタリングとは別のビーム由来による変化だと 考えられる。そこで、照射停止直後の周波数変化幅 をイオンビームのパワー(入射イオンのエネルギー とビーム電流の積)の関数としてプロットした。Fig. 2 lt 60~1080 keV  $C_{60}^+$ ,  $C_{60}^{2+}$ ,  $C_{60}^{3+}$ , 18~200 keV  $C^+$ の結果をプロットしたものである。C60イオン、Cイ オンそれぞれの結果について切片 0 の一次関数でフ ィットしたところ、結果をよく再現した(図中の実 線)。周波数の変化幅と入射イオンのパワーが比例 関係にあることから、この周波数変化は入射イオン がもたらす熱の効果によるものだと結論される。な お、C<sub>60</sub>イオンと C イオンとでフィットした実線の 傾きが異なる原因は明らかではないが、可能な説明 の一つとして、前者でのスパッタリング収量が大き いために、入射イオンによってもたらされる熱が実 効的に少なくなるということが考えられる。

### 3. 高速 C60 イオンマイクロビームの開発

#### 3.1 C<sub>60</sub>イオンビームの高強度化

高速  $C_{60}$  イオンビームは、タンデム加速器を用い て MeV エネルギーまで加速される。一般に、タンデ ム加速器に入射する  $C_{60}$  負イオンビームは、他のイ オン種と同様に Cs スパッター型の負イオン源で生 成させる。 $C_{60}$  負イオンの場合は、イオン化の過程(Cs イオンによるスパッター) で多くの  $C_{60}$  が破壊(解 離) するため、タンデム加速器に入射するビーム電 流は数 10pA 程度である。更に、加速器での荷電変換 過程でも荷電変換ガスとの衝突により解離するため、 最終的にターゲットに到達するビーム電流は数 100 fA と極めて少ない。

ビーム径 1µm 程度までビームを集束するには、集 束レンズの数 m 上流に設置された数 10µm の対物ス リットと集束レンズ前段に設置された 100µm 程度 の発散制限スリットを通過した指向性の非常に高い



Figure 3. Schematic drawing of the negative  $C_{60}$  ion source.

ビームを集束レンズに入射しなければならない。ス リットによるビーム電流の減衰を考慮すると、電流 量 10 pA 以上の C<sub>60</sub>イオンマイクロビームを形成す るためには、タンデム加速器に入射する負イオンビ ームの電流量を µA 級に増強する(従来の数万倍) 必要がある。そこで、電子親和力が大きく、昇華温 度が比較的低いという C<sub>60</sub>の特性に着目し、従来の Cs スパッター方式とは異なる熱電子付着方式によ る C<sub>60</sub>負イオン源を開発した。イオン源の概略を Fig. 3 に示す。オーブンで昇華してノズルに流入した C<sub>60</sub> は、ノズルに内蔵されたタングステンフィラメント から放出された熱電子が付着して負イオン化され、 ノズル先端から引出電極に向かって加速される。

本方式により、電流量 100 nA 以上の C60 負イオン ビームが得られることを確認した。更に、C<sub>60</sub>粉末試 料にヨウ化セシウム(CsI)を添加することで、ビー ム電流が1桁程度増大することを見出した。C60と同 程度の昇華温度である CsI は、C60 とともにノズルに 流入する。フィラメントの熱で解離した Cs はフィラ メント表面の仕事関数を実効的に下げ、熱電子放出 量を増大させる。また、Csの付着によりノズル壁面 の仕事関数も下がるため、壁面との相互作用による 電子捕獲の効率も向上すると考えられる。更に、ハ ロゲン類である I はフィラメント表面状態を清浄に 保ち、熱電子放出量の安定化とフィラメントの長寿 命化に寄与している可能性がある。こうした Cs や I の働きがビーム電流の増加と長時間の安定性に繋が ったと考えられる。生成試験では、10時間以上安定 なビームで電流量 1.3 µA を達成した。

#### 3.2 C<sub>60</sub>イオンマイクロビーム形成装置

タンデム加速器には、磁場型四重極レンズを備え た重イオンマイクロビームラインが設置されている が、質量数720の高速 C<sub>60</sub>イオンの集束に必要な磁 場を発生させることは既存のレンズでは不可能であ った。そこで、重イオンマイクロビームラインとは 異なるビームラインに、新たに設計・製作した静電 型四重極レンズを備えた C<sub>60</sub>イオンマイクロビーム



Figure 4. Photograph of the swift  $C_{60}$  ion micro-beam system.

## [H30-4]

形成装置を構築した。このラインはマイクロビーム 専用のビームラインではないため、実験の都度スリ ット位置やレンズ軸の調整が必要となることから、 レンズの設計では、光学ステージで容易に軸の微調 整が行えるように小型軽量化を図ると同時に、電極 の強度や製作精度、絶縁耐圧等を考慮し、シミュレ ーションを重ねた結果、円柱電極の直径を9mm、電 極ギャップを7.9mmに決定した。また、組立精度の 集束ビーム径への影響を抑えるため、自己アライメ ント機構を備えた構造とした。発散制限スリット、 集束レンズ、照射チャンバーを1枚の光学定盤上に 構築することで、設置のアライメント精度と防振性 能を高めている(Fig.4)。

6 MeV の C<sup>2+</sup>ビームによるマイクロビーム形成試 験を行った。ビーム径は、電顕校正用の金属メッシ ュにマイクロビームをスキャン照射して得られるメ ッシュからの二次電子像 (SEI: Secondary-Electron Image) で評価した。太さ 10 µm のバーでピッチ 60 μmの金メッシュに対する SEI を Fig.5 に示す。物点 にはレンズの 5 m 上流にある直径 200 µm のピンホ ールスリットを使用し、発散制限スリットの間隔を 水平・垂直ともに 100 µm とした。水平方向と垂直方 向の二次電子強度分布の半値幅はそれぞれ 21.5 µm と18.7 µm であり、単純にバーの太さを差し引くと、 ビーム径の半値幅はそれぞれ 5.8 µm と 4.4 µm と評 価できる。今後は、専用の対物スリットを設置し、 目標のビーム径 1 µm を目指す。更に、高速 C<sub>60</sub>イオ ンマイクロビームを用いた分子イメージング技術の 確立へと展開する予定である。

### 参考文献

[1] For example, G. Hayderer *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 70 (1999) 3696-3700.



Figure 5. SEI and distribution of secondary-electron intensity.