

[H30-4]

クラスターイオン照射・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 #, Yuichi Saitoh
Takasaki Advanced Radiation Research Institute,
National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology (QST)

Abstract

A swift C_{60} -ion microbeam apparatus for molecular imaging analysis of organic polymeric materials has been developed. A highly-intense negative C_{60} ion source has been installed on the 3-MV Tandem accelerator of TIARA, QST/Takasaki for this purpose as well as an electrostatic deflector. The microbeam with a size of one μm is successfully formed. Molecular images of a test sample are demonstrated. In addition, nonlinear effect on Au sputtering yields by C_n -ion ($n = 60$ and 70) bombardment is discussed.

Keyword: swift cluster-ion beams, C_{60} -ion beams, microbeams, sputtering

1. はじめに

我々のサブグループでは、 C_{60} イオンビームの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 C_{60} 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ために、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の系統的な測定を行ってきた。本報告では、高速 C_{60} イオンマイクロビームを用いた顕微分子マッピング装置の開発と、keV-MeV 領域の C_{60} , C_{70} イオンによる金のスパッタリングに対する非線形効果について報告する。

2. 高速 C_{60} イオンビームを用いた顕微分子マッピング装置の開発

量研高崎では、タンデム加速器で加速した MeV エネルギーの高速 C_{60} イオンビームを用いた顕微分子マッピング装置の開発を行っている。本装置は、高速クラスターイオン特有の照射効果を利用することで、有機、無機問わず様々な試料表面の主要な構成分子を飛行時間型 2 次イオン質量分析法 (ToF-SIMS: Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometry) を用いて高感度に検出し、任意の分子の強度分布を高精度で取得するものである。薄膜化、多層化、有機/無機複合化、微細化が進むことで一層高度な分析技術が要求される機能性材料の開発のみならず、生体高分子試料に対する脂質や糖質の分布の可視化などバイオテクノロジー分野においても画期的評価手法となりえる。

2.1 C_{60} 専用イオン源の導入

数ミクロンの分解能を持つ顕微分析を実現するために、SIMS の 1 次イオンとして用いる C_{60} イオンビームを $1\mu\text{m}$ 径程度まで集束させることを目標とした。マイクロビーム形成シミュレーションでは、 $1\mu\text{m}$ 径ビームの形成に最低限必要なビーム強度は、タンデム加速器の上流において 500 nA 程度と推算された。これは、 C_{60} イオンをタンデム加速器で MeV エネルギーまで加速するとき、その多くが荷電変換過程で

分解されるため、加速後のビーム強度が加速器入射ビームの 2% 程度まで大幅に減少することを考慮した値である。既存のイオン源では、この値を上回る強度のビームを輸送することが困難であった。そこで、マイクロビーム化に必要な高輝度ビームを生成するために、世界最高レベルのビーム電流強度を有する C_{60} 負イオン源を開発し[1]、タンデム加速器に C_{60} 専用イオン源として新たに導入した。イオン源で生成された C_{60} 負イオンは 60 keV に加速され、加速器入射系ビームラインに輸送される。既設ビームラインの限られたスペースでも効率よく C_{60} ビームを入射系ビームラインへ偏向・輸送するために、レンズ機能を備えた静電型のデフレクターを設計・製作した。これにより、イオン源で生成された数 100 nA ~ $1.3\text{ }\mu\text{A}$ の C_{60} 負イオンビームをほとんどロスすることなく加速器へ輸送することが可能となり、目標とする $1\mu\text{m}$ 径の C_{60} イオンマイクロビーム形成に必

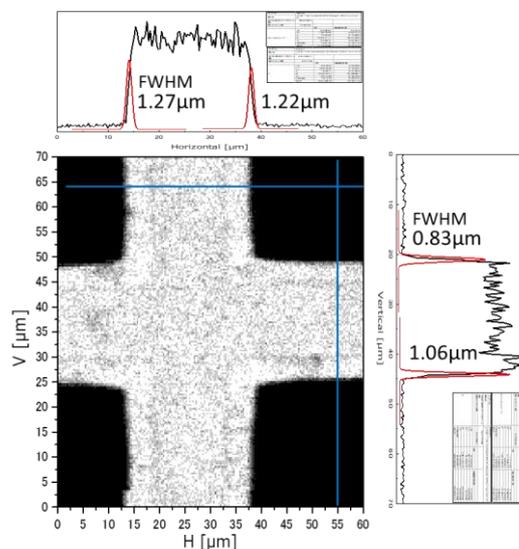


Figure 1. Evaluation of C_{60} ion microbeam diameter by intensity distribution analysis of positive secondary ions from metal mesh.

narumi.kazumasa@qst.go.jp

[H30-4]

要な強度のビームが得られた。

2.2 C₆₀イオンマイクロビームの形成

これまでに、高精細な静電型四重極レンズの設計・製作、既設ビームラインの改造とマイクロビーム形成装置の設置及びマイクロビーム径評価システムを構築し、様々なビーム・設定条件においてビーム径の評価を行ってきた。四重極レンズ下流の静電スキャナーで縦横に走査したスキャンビームを電顕用グリッド金属メッシュ (400 mesh/inch) に照射して2次イオン像を取得し、その強度分布の立ち上り (立下り) からビーム径を評価した。Figure 1 は、5 MeV の C₆₀ イオンマイクロビーム形成時の 2 次イオン像とその強度分布 (青線の位置) である。この時の物点スリットと発散制限スリットは、それぞれ 20 μm 径、800 μm 角であり、スキャン幅は縦 70 μm、横 60 μm とした。分布の立ち上り (立下り) の勾配からビーム径を評価したところ、水平及び垂直方向でそれぞれ 1.25 μm、0.95 μm となり、目標の 1 μm 径を概ね達成した。また、系全体としての集束率は、16.0 (水平)、21.1 (垂直) であった。

2.3 分子マッピング

Figure 2 に、デモ用試料 (無機材料) の分子マッピングの結果を示す。20 μm 径のタングステンワイヤーをアルミプレート上に十字に固定した試料に対し、45° の入射角度で縦 70 μm、横 90 μm の範囲をスキャン照射した。ビーム径約 1 μm の C₆₀ イオンマイクロビームを 5 kHz でパルス化し、1 パルスずつ縦横 100 ステップで、合計 10,000 パルス分のイオンが 1

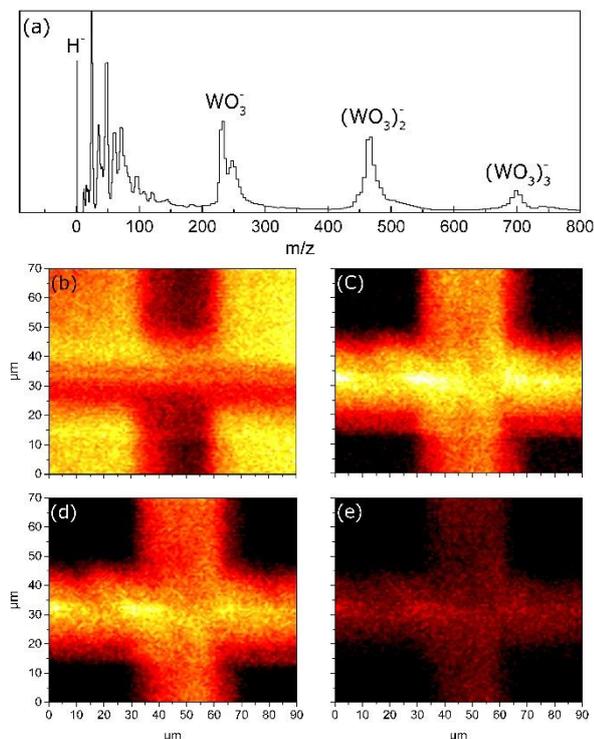


Figure 2. Negative secondary ion mass spectrum (a) and molecular images of an inorganic material: (b), H⁻; (c), WO₃⁻; (d), (WO₃)₂⁻; (e), (WO₃)₃⁻.

回のスキャンで照射される。1 ステップ (1 パルス) ごとに 2 次イオンのマススペクトルを取得するため、1 試料に対して取得するスペクトルの合計は 10,000 スペクトルとなる。図は、1,200 回のスキャン、取得時間約 3,000 秒で得られた結果である。Figure 2(a) で示す、全スペクトルの合計では、水素や炭素、酸素、アルミなどの化合物のほか、三酸化タングステンとその二量体、三量体が確認できる。Figure 2(b) から 2(e) は、それぞれ水素、三酸化タングステン及びその二量体、三量体の強度マップであり、水素がタングステン表面に比べアルミプレート表面に多量に存在している様子や、酸化タングステンを選択したマップでは、タングステンワイヤーの形状がはっきりと認識できる。今後は、測定システムを改良してマッピングの高速化を図ると共に、有機/無機複合材や生体高分子などの試料について分子マッピングを試み、本装置の有用性を詳細に評価する。

3. keV-MeV C₆₀, C₇₀ イオンによる金のスパッターリングに対する非線形効果

クラスターイオンを固体標的に照射すると顕著なスパッターリングが観測され^[2]、この特徴を利用した 2 次イオン質量分析法 SIMS 等への応用が進められてきた。クラスターイオンによるスパッターリングにおいては、その収量がクラスターイオンの構成原子数 n に比例せず、例えば Au クラスターイオンによる Au のスパッターリング収量は n^2 に比例することが報告されている^[2]。これはスパッターリングに対する非線形効果である。本報告では、これまでに測定してきた 30 keV~9 MeV の C₆₀ イオン、及び同速度の C₇₀、

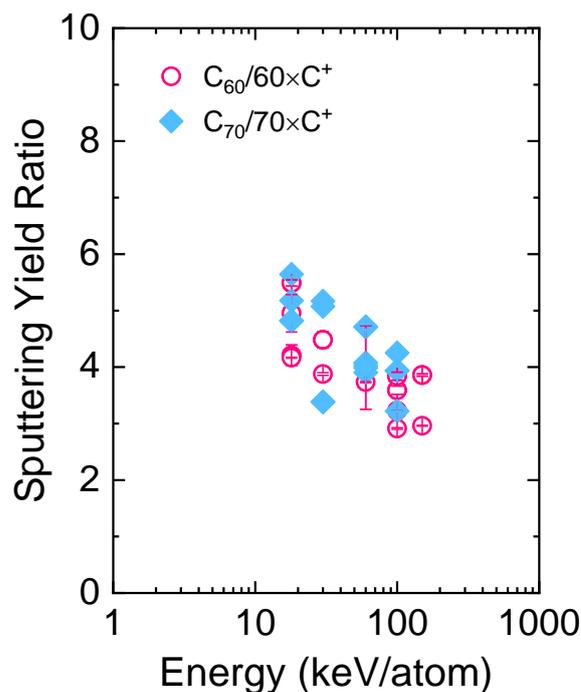


Figure 3. Ratio between Au sputtering yields per carbon atom by C₆₀ or C₇₀ ions and by C ions.

[H30-4]

C イオン衝撃による金のスパッタリング収量の結果を基にその非線形効果について議論する。

スパッタリング収量の測定には水晶振動子微量天秤法を用い、電極用として水晶振動子に蒸着されている金薄膜をそのまま標的として用いた。keV 領域の C₆₀、C₇₀ イオンビームは量研高崎研 TIARA の 400 kV イオン注入装置からの 1 価、2 価、3 価のイオンビームを、MeV 領域の C₆₀、C₇₀ イオンビームは同 3 MV タンデム加速器からの 1 価と 2 価のイオンビームを利用した。また、18~150 keV の C⁺ビームはイオン注入装置からのイオンビームを用いた。

Figure 3 に非線形効果を評価した結果を示す。横軸は 1 原子当たりのエネルギー、縦軸は入射イオンの構成原子数 n で割ったスパッタリング収量と、同じ速度の C イオンによるスパッタリング収量の比 $R(n) = Y(n)/nY(1)$ である ($Y(n)$ は構成原子数 n のクラスターイオンによるスパッタリング収量)。この比 $R(n)$ は非線形効果の指標となり、 $R(n) = 1$ の場合は非線形効果が認められないということになる。図より、 $R(n) = 3 \sim 6$ となり、1 原子当たりのエネルギーにわずかながら依存していること、C₆₀ イオンと C₇₀ イオンとはほぼ等しいこと ($R(60) \approx R(70)$) がわかる。 $R(n) > 1$ より非線形効果は認められるものの、 $R(n) = 3 \sim 6$ という値は、[2] のようにスパッタリング収量が n^2 に比例するには至らず、それほど大きな効果ではないことを示す。また、 $R(60) \approx R(70)$ であることから、非線形効果は構成原子数 n にほとんど依存しない、あるいは依存(増加)しても既に飽和状態にあると考えられる。一方、このエネルギー領域で C イオンに対する Au の核的阻止能は単調減少しているため^[3]、 $R(n)$ のエネルギー依存性は非線形効果が定性的に核的阻止能に依存していることを示唆していると考えられる。しかし、エネルギー依存性についてはさらなる考察が必要である。

参考文献

- [1] A. Chiba, et al., Quantum Beam Sci. 4, 13 (2020).
- [2] 例えば H.H. Andersen, et al., Phys. Rev. Lett. 80, 5433 (1998).
- [3] J.F. Ziegler, SRIM code version 2008.