

[R4-2]

高速重イオン衝突基礎・応用研究における イオントラック形成機構を通じた連携

Coordinated Study of Basic and Application Research utilizing Fast Heavy Ion Collisions through Ion-Track Formation Mechanism

今井 誠^{#A)}, 富田成夫^{B)}, 堀 史説^{C)}, 安田和弘^{D)}, 雨倉 宏^{E)}, 針井一哉^{F)}, 中 竜大^{G)},
笹 公和^{B)}, 金野泰幸^{C)}, 岩瀬彰宏^{C)}, 石川法人^{H)}, 加藤秀実^{I)}, 大久保成彰^{H)},
吉岡 聡^{D,C)}, 加藤丈典^{J)}, 織瞳磨^{J)}, 伊神洋平^{K)}, 川面 澄^{L)}, 小牧研一郎^{M)}, 柴田裕実^{N)},
左高正雄^{O)}, 岡安 悟^{H)}, 高廣克己^{P)}, 松原章浩^{Q)}

Makoto Imai^{#A)}, Shigeo Tomita^{B)}, Fuminobu Hori^{C)}, Kazuhiro Yasuda^{D)}, Hiroshi Amekura^{E)}, Kazuya Harii^{F)},
Tatsuhiro Naka^{G)}, Kimikazu Sasa^{B)}, Yasuyuki Kaneno^{C)}, Akihiro Iwase^{C)}, Norito Ishikawa^{H)}, Hidemi Katoh^{I)},
Nariaki Okubo^{H)}, Satoru Yoshioka^{D,C)}, Takenori Kato^{J)}, Toma Ori^{J)}, Yohei Igami^{K)}, Kiyoshi Kawatsura^{L)},
Ken-ichiro Komaki^{M)}, Hiromi Shibata^{N)}, Masao Sataka^{O)}, Satoru Okayasu^{H)}, Katsumi Takahiro^{P)}, Akihiro Matsubara^{Q)}

^{A)} Department of Nuclear Engineering, Kyoto University

^{B)} Institute of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba

^{C)} Department of Quantum and Radiation Engineering, Osaka Metropolitan University

^{D)} Department of Applied Quantum Physics and Nuclear Engineering, Kyushu University

^{E)} National Institute for Materials Science (NIMS)

^{F)} Quantum Materials and Applications Research Center, National Institutes for Quantum Science and Technology

^{G)} Faculty of Science, Toho University

^{H)} Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

^{I)} Institute for Materials Research, Tohoku University

^{J)} Graduate School for Environmental Studies, Nagoya University

^{K)} Graduate School of Science, Kyoto University

^{L)} Theoretical Radiation Laboratory

^{M)} Atomic Physics Laboratory, RIKEN

^{N)} Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University

^{O)} Tandem Accelerator Complex, University of Tsukuba

^{P)} Department of Chemistry and Materials Technology, Kyoto Institute of Technology

^{Q)} PESCO Co., Ltd.

Abstract

When single swift heavy ion in MeV/u energy range irradiates solid matter, unique characteristic features that cannot be brought about by any other means like photon or electron impacts are exhibited as a result of cumulative effects of consecutive elastic and inelastic collisions between the projectile ion and target atoms. Those interactions of energetic ions with materials are the basis of a wide range of applications, such as material analysis, material modification and so on. The present coordinated research is intended to clarify those collision processes inside the solid target as well as to quest for controlled modification of physical properties of solid material. In collisions of swift heavy ions, energies transferred to target electrons via inelastic processes are larger than those to target nucleus via elastic collisions by three orders of magnitude. Such target-electron excitations are considered to play a role in material modification, as they take place as deep as the ion range of 10 μm inside the solid. The energy of the excited target-electrons is transferred to target lattice and provides ultrafast local heating along the ion path, through which a cylindrical damage region of several nm of diameter, *i.e.*, an ion track, is formed when the electronic energy is larger than a material-dependent threshold value. In the present coordinated research, we extensively continue our previous efforts by measuring charge-state evolution of heavy ions after penetrating C-foils, by measuring secondary electron yields for cluster projectile ions, by observing local structure and hardness change of intermetallic compounds with heavy-ion irradiation, by observing irradiation effects of ceramics oxides, by observing the cluster effect on the ion-track formation, by metamagnetic-material formation with heavy-ion irradiation, and by applying ion-track formation on space minerals to measurements of cosmic-rays. The last of these themes, led by Prof. Naka has been invited to the present coordinated research in 2024.

Keyword: charge-state distribution, secondary electron, cluster effect, amorphous, radiation effects, hardness, ion track, C₆₀ ion, mineral, paleo detector, damage track, cosmic-ray, dark matter

[R4-2]

1. 本連携重点研究課題の目的

高速重イオン照射に伴い、固体標的内では入射イオンおよび標的構成原子の励起、電離、電子捕獲、電子損失などの非弾性散乱ならびに標的構成原子核による入射イオンの弾性散乱が繰り返され、その重畳により他の手法ではなし得ない特徴的な構造（イオントラック）が形成され、標的の物性変化が発現する。また近年、入射イオンをクラスター化すると近接効果によりその効果が増すことも明らかになりつつある。本連携重点研究は、固体標的内でのこれらの基礎過程の未解明部分を明らかにしつつ、その知見を固体材料物性の改質・制御への応用に効果的にフィードバックして連携した成果を探索し、さらには産業応用への発展を見込むことを目的とする。

日本原子力研究開発機構原子力科学研究所（原科研）と量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所（量研）のタンデム加速器より得られる核子あたり数 MeV の高速重イオンでは、非弾性散乱による電子的阻止能が弾性散乱による核的阻止能より 3 桁以上大きく、さらに飛程も 10 μm 程度に達することから、固体表面から内部にまで電子励起効果がおよび、材料物性改質に有効に働く。電子励起を引き起こす個々の非弾性衝突過程は入射イオンのエネルギー、価数、電子準位などに強く依存し、電子励起効果は個々の非弾性過程の頻度すなわち衝突断面積によっても異なる。我々は H19～H21 年度、H22～H24 年度、H25～H27 年度、H28～H30 年度ならびに H31～R3 年度の一連の連携重点研究において、特に電子励起効果に注目して基礎過程解明と材料物性改質の研究を進め、固体中の入射イオン電荷状態分布の動的变化や、クラスターイオン入射による二次電子収量における非線形効果などの衝突基礎過程に関する知見を新たに得ると共に、電子励起により材料に形成されるイオントラックの直接観察および高速重イオン照射における材料の電気伝導度・磁化特性・表面硬度・原子構造（X 線回折強度）などの物性改質を実現し、照射効果に電荷依存性やクラスター効果を見出すなど基礎過程と照射効果の有機的研究連携を図ってきた。特に照射効果における電荷依存性については、それぞれ別の小テーマで見いだされた非平衡電荷発展と照射による格子定数やスパッタリング率の変化の研究結果を連携し、世界で初めて定性的、定量的説明を与えて連携の効果を最大限に発揮した。

R4～R6 年度は上記の結果をうけ、照射効果発現の鍵と考えられるイオントラック形成機構に着目して、高速重イオン衝突基礎過程の解明と高速重イオン照射による材料物性制御のさらなる進展をめざしている。2023 年度に原科研タンデム加速器においてエネルギー分析電磁石の故障による運転休止が発生したのに続き、2024 年度末には絶縁ガス冷却装置に故障が発生し、運転休止を余儀なくされている。また、「物質透過後の高速重イオン電荷分布」および「コンボイ電子収量におけるクラスター効果」テーマにおいて使用する「重イオンスペクトロメータ」および「イオンビーム荷電変換装置」に故障が生じ、2024 年内の実験測定を中断せざるを得なかったが、重イ

オンを照射に利用する研究グループ「高速重イオン照射による金属間化合物の局所構造と硬度変化」、「酸化セラミックスの照射効果とイオントラック構造」、「イオントラック形成とそのクラスター効果」、「重イオン照射による磁気メタマテリアル作製」については例年通りの成果を得た。また、2024 年度より、新たに東邦大学中准教授らによる応用研究「宇宙（地球）鉱物へのイオントラック形成による宇宙線計測」テーマを本連携重点研究に招いた。（2.7 章）

2. 各グループの実験と結果・考察

2.1 物質透過後の高速重イオン電荷分布

高速重イオンと物質の衝突過程はイオンの価数と電子状態に強く依存するため、物質中を透過する高速イオンの電荷分布とその変化を知ることが、照射効果研究のため必要不可欠である^[1]。物質透過により、イオン価数はその入射価数に依存しない一定の平衡状態分布に達する。我々は極薄炭素膜（ $\sim 0.9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ）標的を実現することで、これまで研究例が少なかった平衡化以前の非平衡電荷分布や、平衡長すなわち平衡化に要する標的長に関する実験を可能とした^[2-7]。2024 年度は前年度発生したイオン検出器の故障を修理して望んだが、新たに分析電磁石制御装置に故障が発生し、絶縁ガス冷却装置故障とあわせ、新たな実験データは得られていない。

2.2 コンボイ電子収量におけるクラスター効果

複数の原子より構成される分子（等核分子の場合クラスターと呼ばれる）を加速したイオンビーム、特にボーア速度より高速な分子ビームによる固体照射によって誘起される様々な物理現象は、同数の原子を個別に入射した場合とは異なる。これは、複数の原子が時間的、空間的に近接して存在するためにおこる効果で、総じてクラスター効果あるいは近接効果と呼ばれる。本研究では高速分子・クラスタービーム照射において炭素薄膜から放出される二次電子のうちコンボイ電子の収量に着目して二次電子生成機構におけるクラスター効果の解明し、材料改質への効果的応用に資する。これまで、 C_n^+ 入射時のコンボイ電子収量は同速度の C^+ 照射時に比べて大きく増加し、その効果は膜厚 150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度まで持続することを明らかにした^[8-10]他、 O_2^+ 照射においても同様の効果を確認している。これはイオン電荷や阻止能における近接効果が消滅している長いイオン間距離においても、コンボイ電子収量においては近接効果が持続することを示唆する。現在、コンボイ電子収量におけるクラスター効果は同核原子分子において観測されているが、異核二原子分子の場合、薄膜透過によるエネルギー損失が異なることにより二原子間に速度差が生じ、分子（クラスター）効果における等速度性の重要度についての知見が得られると期待され、異核二原子分子である CO^+ および CH^+ によるコンボイ電子収量の測定を計画しているが、2024 年度はタンデム加速器設置のイオンビーム荷電変換装置の排気系に故障が発生し、絶縁ガス冷却

[R4-2]

装置故障とあわせ、新たな実験データは得られていない。

2.3 高速重イオン照射による Ni-Zr 金属間化合物の局所構造と硬度変化

重イオン照射は、照射領域に局所的・瞬間的な高密度エネルギーを与えるため、条件によっては構造変化をきたし材料特性にも変化をもたらす場合がある。これは、原子の弾き出しや電子励起などの効果によるものであるが、付与されたエネルギーはその後極めて短時間のうちに原子の再配列やフォノンの拡散により平衡状態に向かう。一般的な合金においては、エネルギーが拡散するまでの間に原子拡散や格子位置に原子の再配列が起こるが、原子配置が凍結される場合がある。合金によって 10^2 K/s 程度の急冷速度でも原子の拡散が起こりにくい場合、格子が乱れた状態から結晶に戻れず凍結される合金がある[11]。アモルファスは、原子配列に規則性を有しないことから原子面の変位が起きないため変形しにくいなどの材料の機械的特性が結晶と大きく異なる。また、同様の理由で電子の易動度が結晶のそれと比べ低下するなど物理的・化学的な特性にも大きく影響する。そのため、部分的なアモルファス化は材料の機能性制御プロセスとしても有効な方法であると考えられる。しかし、照射によるアモルファスに到達するまでの結晶の乱れを引き起こす照射条件に加え、

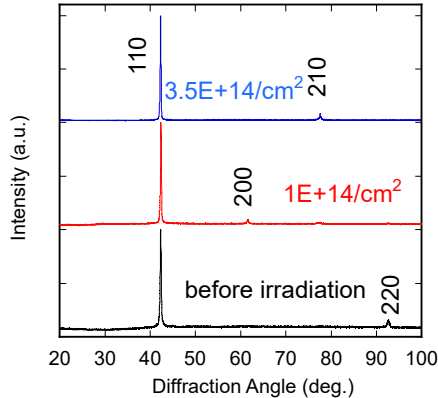


Figure 1. XRD profiles for NiTi alloy sample before and after 200 MeV Xe ion irradiation.

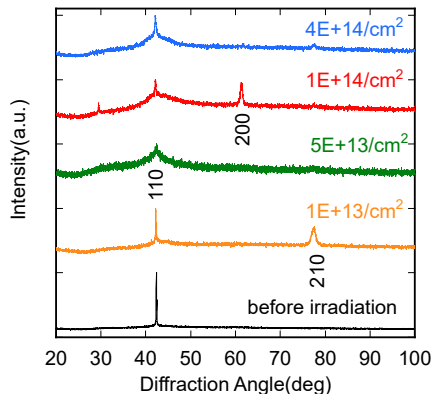


Figure 2. XRD profiles for NiTi alloy sample before and after 200 MeV Au ion irradiation.

乱れた原子配置がそのまま凍結されるかどうかは合金の種類に強く依存するが、それらの条件について多くのパラメータが存在することがわかってきた[12]。これまでの実験でアモルファス化が比較的誘起され易いと考えられる金属間化合物の中で、軽量な高強度実用材の1つである NiTi 系合金についての改質を目的とした重イオン照射を行っているが、六方晶の Ni_3Ti 合金では全くアモルファス化が誘起されなかった。また、B19'構造の NiTi では一部アモルファス化する条件があるが強い照射条件依存性を示している[13]。今回は B2 構造の NiTi 合金に対し重イオン照射を行い、照射領域の微細構造及び結晶性の変化について評価を行った。また、その際の機械的強度の変化についても調べた。

試料はアーク溶解でボタン状 $\text{Ni}_{50}\text{Ti}_{50}$ 合金を作成し、厚さ 0.5 mm の板材に切り出した後、回転研磨機による機械研磨およびバフ研磨で鏡面研磨を施し、真空中にて 900°C -30min の熱処理を行った。作成した試料は X 線回折により B2 単相であることを確認した。この試料に 200MeV の Au イオン、及び 200MeV の Xe イオンを JAEA 東海研のタンデム加速器にていずれも $10^{14}/\text{cm}^2$ のオーダーまで照射を行った。照射前後の試料について X 線回折測定(XRD)による結晶構造の評価、高エネルギー加速器研究機構にて Ni 及び Ti の K 吸収端による X 線吸収微細構造(XAFS)測定、陽電子消滅同時計数ドップラー拡がり及び測定、マイクロビッカース硬さ測定を行った。

Fig. 1 は 200 MeV の Xe イオン照射を行った B2-NiTi 合金の XRD プロファイルの変化を示す。 $10^{14}/\text{cm}^2$ まで照射しても結晶性は低下せずアモルファス化を示すハローパターンも全く現れなかった。一方、Fig. 2 の 200MeV の Au イオンで照射した場合の XRD の変化からは $10^{13}/\text{cm}^2$ の照射量から 40 度付近にブロードなハローパターンが現れ始め、照射量の増加とともに全体の結晶ピークも低下してアモルファス化が起こっていることがわかる。このように同じイオンエネルギーでもアモルファス化の強いイオン種依存性が確認された。また、Figs. 3 と 4 にはそれぞれ Xe イオンと Au イオン照射の Ti-K 吸収端による XAFS スペクトルの照射量に対する変化をそれぞれ示す。この結果は XRD と非常に良い相関を示しており、結晶性が保持された Xe イオンでは Ti 原子周囲の第一配位を示す結合ピークもほとんど変化していないのに対し、Au イオン照射では同じく第一配位のピークは照射が進むにつれ大きく低下し Ti-Ni 結合が減少していることを示している。この変化は B2 型規則構造を示す合金ではそれぞれ隣接する原子が異種原子 (Ti の隣は必ず Ni) であるため、Ni 吸収端で観察しても全く同じ傾向を示すことが確認された。特にアモルファス化が進んだ Au イオン照射では、低下した第一配位の代わりの配位を示す新たな吸収ピークも現れなかったことから、アモルファス化過程において個々の原子結合が壊れほぼランダムな原子配置に移行したものと考えられる。一般的な急冷で得られるアモルファスは必ずしも原子配置はランダムではなく微細クラスターなど何らかの

[R4-2]

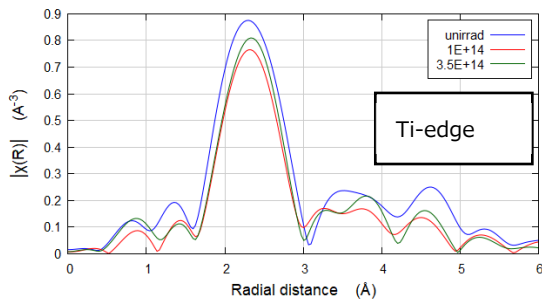


Figure 3. Changes in FT-XAFS spectra of NiTi alloy near the Ti-K edge due to 200 MeV Xe ion irradiation.

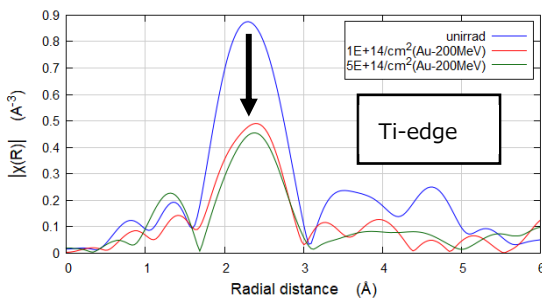


Figure 4. Changes in FT-XAFS spectra of NiTi alloy near the Ti-K edge due to 200 MeV Au ion irradiation.

局所的配位が存在するが、照射によって生成したアモルファスでそのような微視的規則性は確認できなかった。このため、熱による急冷で生成するアモルファスと照射誘起アモルファスでは状態が異なる可能性が示唆される。

一方、照射による表面硬さ変化を Fig. 5 に示す。この図から明らかに Au イオン照射の方が Xe イオン照射に比べ硬くなっていることがわかる。この変化の違いはアモルファス化の有無に対応すると考えられる。すなわちアモルファス化する事により転位の移動が起こらないマトリクスでの強度が上昇したものと考えられる。一方の Xe イオン照射でもわずかに硬さは上昇しているが、これは空孔、格子間原子、転位など照射欠陥の導入が原因と考えられる。

今回、同じエネルギーで Au イオンと Xe イオンでアモルファス化誘起の有無が異なった大きな要因の 1 つとして、Fig. 6 に示す核的阻止能 Sn の違いがあげられる。2つの照射で電子的阻止能 Se はいずれも大きな違いはないが、 Sn は Au イオンのほうが Xe イオンに比べ 1.5 倍程度高い値を示している。 Sn の効果としてある一定以上の Sn を超えることで結晶性の再配列が出来ないほどの大きな損傷が導入され、これらの Sn 値の間にアモルファス化の閾値があることを示唆している。

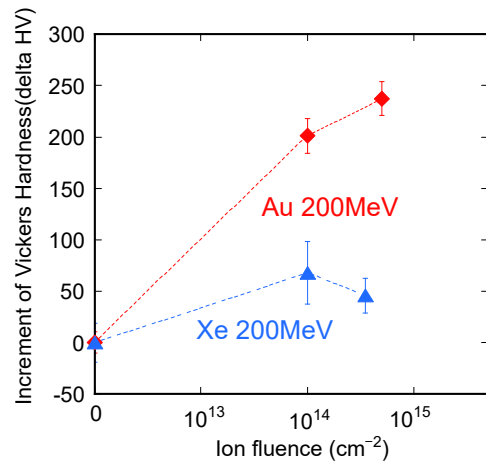


Figure 5. Change in micro-Vickers hardness due to 200 MeV Au and Xe ion irradiation.

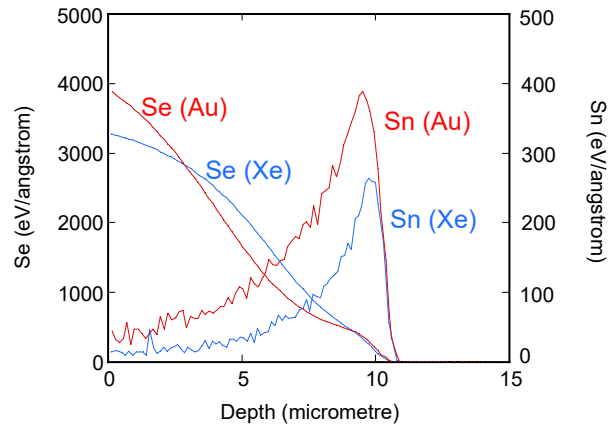


Figure 6. Depth profile of the nuclear stopping power, Sn , and the electronic stopping power, Se for 200 MeV Xe and Au ion.

2.4 Gd₂O₃ 添加した CeO₂ のイオントラック構造

本グループでは、UO₂ 燃料の模擬物質としての CeO₂ 中のイオントラック構造に関する研究を進めている。2024 年度は、可燃性毒物として用いられる Gd₂O₃ を添加した CeO₂ 焼結体を作製し、高速重イオン (200 MeV Xe イオン) 照射に伴って形成されるイオントラックの構造を透過型電子顕微鏡(TEM)法および走査型透過電子顕微鏡(STEM)法により、Gd₂O₃ 濃度の関数として観察した。

直径 3 mm のディスク状に整形した Gd₂O₃-CeO₂ 焼結体 (Ce_{1-x}Gd_xO_{2-x/2} : $x = 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$, および 0.5) にタンデム加速器を用いて、室温にて 200 MeV Xe イオンを照射量 $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ または $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ まで照射した。本照射量は高速重イオン照射によって誘起される高密度電子励起損傷 (回復領域) が 100 回程度以上重畳する高照射量に相当する。イオン照射試料の背面よりディンプレー加工および Ar イオン研磨を施し、電子顕微鏡観察用の薄膜試料を作製した。これらの試料に対して透過型電子顕微鏡 (JEM-2100HC) および走査透過電子顕微鏡 (JEM-ARM200CF) により微細構造観察を加速電圧 200 kV

[R4-2]

にて行った。

Fig. 7 は [110] 方向から観察した非照射および 200 MeV Xe イオン照射 $\text{Ce}_{1-x}\text{Gd}_x\text{O}_{2-x/2}$ 試料の電子回折図形である。Fig. 7 (a) ~ (c) はそれぞれ $x = 0.1, 0.2$ および 0.5 の非照射試料、(d) ~ (f) はそれぞれ $x = 0.1, 0.2$ および 0.5 の 200 MeV Xe イオン照射試料である。非照射試料の $x = 0.2$ において、 $\bar{2}20$ 基本反射と透過波の間に規則反射が現れ、その強度は Gd_2O_3 濃度の増加に伴って増大している。この変化は Gd_2O_3 添加による酸素空孔配列の規則化を伴う C 希土構造への相変化によるものである。一方、200 MeV Xe イオンを照射した試料では、非照射試料と比較して規則反射強度が低下し、欠陥型蛍石構造へと変化する様子が観察された。

Fig. 8 は明視野法を用いてフレネルコントラストとして観察した $\text{Ce}_{1-x}\text{Gd}_x\text{O}_{2-x/2}$ 試料中のイオントラック直径の平均値および数密度を Gd_2O_3 濃度 (x 値) の関数として表したものである。イオントラック直径および数密度はいずれも Gd_2O_3 濃度と共に単調に減少しており、 Gd_2O_3 添加によってイオントラックが形成され難くなることを示している。この結果をイオントラックの蓄積モデルを用いて解析し、図 3 に示すイオントラック数密度の低下は、 Gd_2O_3 添加に伴って個々の入射イオンが誘起する回復影響領域が

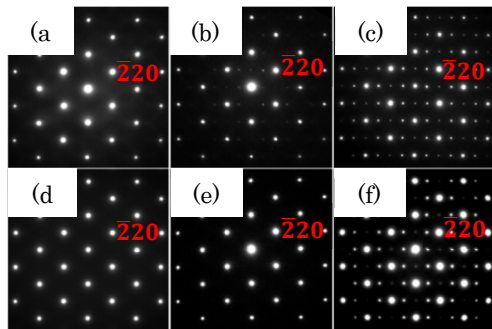


Figure 7 Electron diffraction patterns of unirradiated and irradiated $\text{Ce}_{1-x}\text{Gd}_x\text{O}_{2-x/2}$ specimens with 200 MeV Xe ions. Observations were performed from [110] directions. (a) ~ (c) are from unirradiated specimens: (a) $x = 0.1$, (b) $x = 0.2$, (c) $x = 0.5$. (d) ~ (f) are from ion irradiated specimens: (d) $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$: $x = 0.1$, (e) $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$: $x = 0.2$, (f) $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$: $x = 0.5$.

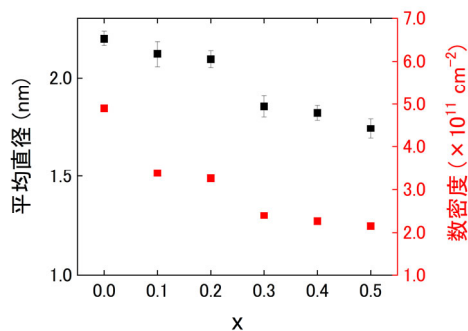


Figure 8 Average diameter and areal density of ion tracks in $\text{Ce}_{1-x}\text{Gd}_x\text{O}_{2-x/2}$ specimens induced by 200 MeV Xe ions as a function of Gd_2O_3 concentration (x value).

増大することに起因すると推測した。

2.5 イオントラック形成とそのクラスター効果

本課題では、同程度の電子阻止能 S_e を示す単原子の高速重イオンと MeV 域の C_{60} クラスターイオンを同じ物質に照射し、そのイオントラック形成挙動を比較し、クラスターイオンに特徴的な効果を抽出しその背景にある機構を明らかにする。

我々はこれまでにシリコン (Si) に対して、同程度の S_e を与える 200 MeV Xe イオンと 3 MeV C_{60} イオンを照射し、それぞれの場合におけるイオントラックの形成の有無を透過電子顕微鏡 (TEM) 観察により評価してきた。200 MeV Xe イオンも 3 MeV C_{60} イオンも Si 中では同程度の $S_e \sim 14.0 \text{ keV/nm}$ を示すが、 C_{60} イオン照射ではトラックが形成されたものの、Xe イオン照射では観測されなかった^[14]。この違い（つまり広義の意味でのクラスター効果）の起源を解明するために、Si での挙動をより詳しく検討^[15]するとともに、他の半導体でも同様の挙動が観測されるかを探索中である。

しかし予期せぬ困難もあった。化合物半導体の窒化アルミニウム AlN において入手できた材料の質が Si に比べて悪く、TEM で観察するとイオンビーム照射前でも欠陥・不完全性由来と思われる多様な構造が多数観測された。そのため C_{60} イオン照射試料でドット状の構造が観測されても、(C_{60} イオンの飛程は短いため) 本当にトラックかどうかを判定することが難しかった。そこで化合物半導体ではなく、Si 以外の単元素半導体である Ge と diamond について文献調査を行った。Ge では既にイオントラックの形成が報告されていた。Diamond は C_{60} イオン照射された報告がなく、また単原子の高速重イオン照射ではトラックが形成されないと結論されていた。そこで 2023 年度に diamond 試料を 2~9 MeV の C_{60} イオンで照射したところ、イオントラックを観測することに成功した^[16]。これは diamond での初めてのイオントラックの報告であった。2 MeV の C_{60} イオンは diamond 中で $S_e \sim 29 \text{ keV/nm}$ を示す。200 MeV の Xe イオンは diamond 中で同程度の S_e を示すため、両者の照射効果を比較した。両者は同じ程度の S_e にも関わらず、 C_{60} イオン照射ではトラックが観測されたものの Xe イオン照射では観測されなかった。この挙動は Si と同様であった。

2024 年度は、引き続き C_{60} イオン照射 diamond により形成されたイオントラックの詳細観測を行った。Fig. 9 は球面収差補正機能を有する走査型の透過電子顕微鏡 (STEM) で観察した 9 MeV の C_{60} イオンを照射した diamond の STEM 明視野像である。Diamond は特に格子間隔が狭いために、通常の STEM 観察では格子間隔が分解能に近く格子像を得ることが難しい。そのため高分解能な収差補正機能を有する STEM を使わざるを得なかった。低倍率 (a) で観測される十数個の黒い点状の構造はどれもイオントラックであると考えられる。そのうち、Fig. 9 (a) の赤丸で囲んだトラックを中程度に拡大したものが Fig. 9 (b) である。昨年度報告した分解能のあまり良くない通

[R4-2]

常の TEM 像ではトラックは円形または楕円形として観測されたが、高分解能のためトラックのより詳細な構造が観測できた。Fig. 9 (b)では中心の白く丸い部分から3方向に黒い構造が伸びているが、他のトラックを拡大すると、中央の丸は共通だが黒い構造の方向には多少バリエーションがあるようである。

Fig. 9 (d)は(b)のトラックの高分解能像である。Diamond の 022 に相当する格子縞が一部の除く全域で観測される。黒い部分に関しては全ての領域ではないが、一部はこの格子縞が重なって観測される。しかしトラック中央の白い部分ではこの格子縞が観測されず、非晶質化していると考えられる。図には示さないが、トラックの深さ方向の断面像を観察した TEM 像によると、トラックと試料表面が交差する部分には明確なヒルロックらしきものが観察されている。ヒルロックはトラック形成時にトラック内部から放出された物質がトラックの出口付近に堆積したものと考えられ、今回の STEM 像で観測された黒い部分はトラック形成時にトラックから噴き出した物質が付着していると考えている。Fig. 9 (a)をよく見ると、観測されたトラックは Fig. 9 (b)のような黒い部分が正三角形に近い構造だけではなく、ある程度黒い部分の形に自由度がありそうである。このこと

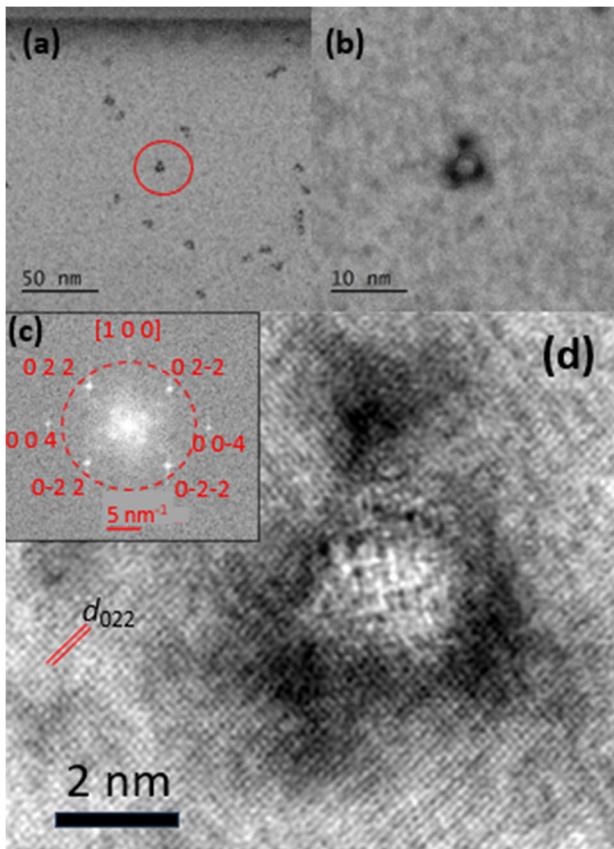


Figure 9. Scanning transmission electron microscopy bright-field (STEM-BF) images of ion tracks formed under 9 MeV C_{60} ion irradiation incident to the [100] zone axis of a single crystalline diamond. (a) Low, (b) medium, and (d) high magnification images. (c) a fast Fourier transform (FFT) image of the high magnification image.

は黒い部分はトラックからの放出物と考えると説明が付くが、この黒い部分でも diamond 非照射部分とコヒーレントな格子縞が観察されている。放出物が非晶質また結晶のどちらであっても、格子縞が diamond 基板の結晶方向と一致する理由は自明ではない。この黒い部分の格子縞は下地の diamond 結晶部分に起因するものが重なって観測されたと推測している。

2.6 重イオン照射による磁気メタマテリアル作製法

絶縁体磁性体に高速重イオンを照射すると、イオントラックがアモルファス化することにより磁性変化が生じることが知られている。本研究ではこの効果を利用し、マスクパターン上から強磁性絶縁体 LuIG 基板に照射を行うことで、非自明な磁気ダイナミクスが発現するような磁性体微細周期構造の作製を行ってきた。

2024 年度、マイクロマグネティックシミュレーションによる数値計算等により、微細加工パターン上に生じるボルテックスによるマグノンホール効果の観測用試料を設計し、試料を作製した (Fig. 10)。その磁化測定の結果、現在用いている LuIG 基板の磁気異方性パラメータがマグノンホール効果測定に不向きであることがわかったため、より適した磁気異方性パラメータを有する別組成の LuIG 基板を準備したが、タンデム加速器絶縁ガス冷却装置の故障により新たな試料作製はできなかった。

照射サンプルの磁気ダイナミクスは磁気光学 Kerr 効果を通じてイメージングする。照射実験と並行して測定装置の故障を修繕し、システムのバージョンアップを図っており、試料が完成し次第すぐにイメージング測定を行う予定である。

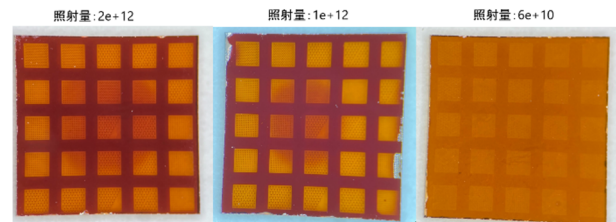


Figure 10. Photo of LuIG samples with micro-patterning by 200 MeV Xe-ion irradiation.

2.7 宇宙（地球）鉱物へのイオントラック形成による宇宙線計測

これまでの宇宙観測のさまざまな観測データから、未知の重力源が存在することがわかっており、この重力源を暗黒物質と呼んでいる。暗黒物質は、宇宙の構造形成において重要な役割を担っており、特に、銀河形成は暗黒物質なくして成しえない。また、その実態は、現在の素粒子物理学でわかっている粒子の中にそれを担える候補粒子が存在しないことから、未知の粒子、すなわち未知の物理法則に従う粒子である可能性が高く、自然科学の基本法則に関わる重要な問題である。現在、さまざまな手法で暗黒物質の直接検出実験が世界中で行われているが、未だそ

[R4-2]

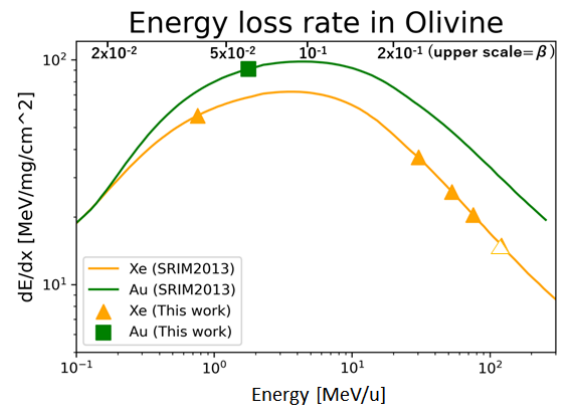
の正体解明につながる信号検出には至っていない。

一方、暗黒物質が取りうる質量領域は幅広く、その到来量は質量に反比例する。特に、重い暗黒物質（質量で水素の 10^{10} 倍以上）は、素粒子論的に興味深いモデルが存在する一方、到来量が極めて少なく、既存の実験では探索ができない。本研究は、鉱物の放射線飛跡検出能力に着目した新たな暗黒物質探索を推進するものであり、鉱物をもつ数億年スケールの年代（観測時間）と結晶欠陥による放射線検出性能を活かした新たな研究を推進している。また、暗黒物質のみならず、隕石中のカンラン石等の分析において宇宙における超重宇宙線の信号も取得することができ、近年活発に議論されている中性子連星合体等における元素合成プロセスに関わる超重宇宙線の直接検出も合わせて推進できる。本研究は、タンデム加速器による重粒子イオンを鉱物に照射することで、その検出性能を較正することを目的とする。

鉱物試料として、白雲母とカンラン石をベースにした。白雲母については、劈開性があることから、容易にシート状の試料を作成でき、それを試料台に設置する。カンラン石については、樹脂に埋め込み、表面研磨し、表面をむき出しにした試料を作成し設置し、それぞれの試料の $1 \times 1 \text{ cm}^2$ の領域にイオンを照射した。本研究において照射したイオン種とエネルギーならびに照射量を Table.1 に示す。特に、検出性能は主に光学顕微鏡で分析することから、飛跡密度が高すぎる場合、顕微鏡視野を埋め尽くしてしまうため、可能な限りドーズ量を抑え、約 $10^6 \sim 10^7 / \text{cm}^2$ になるようにビーム電流調整ならびにシャッター開閉時間を調整した。照射した試料は、化学エッチン

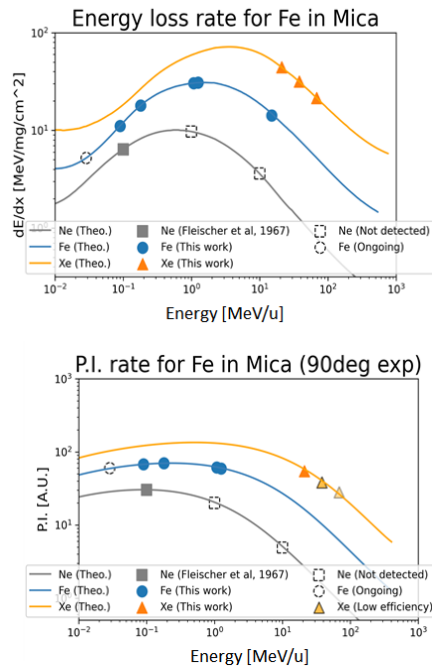
Table 1. List of exposed ions and those properties

イオン種	エネルギー [MeV]	ドーズ量 [$/\text{cm}^2$]	試料
Fe	60, 70	$10^6 \sim 10^7$	白雲母
Au	350	$10^6 \sim 10^7$	白雲母、カンラン石
Xe	100	$10^6 \sim 10^7$	白雲母、カンラン石

Figure 12. Relationship between dE/dx -energy for olivine, and points are condition confirmed in this test.

グ処理を行った後光学顕微鏡により飛跡検出の有無を確認した。また、他機関において照射された高エネルギー重イオンの結果も合わせて、飛跡検出性能を評価した。Fig. 11 に白雲母に対する照射イオンの阻止能 dE/dx ならびに一次イオン化率を、また Fig. 12 にカンラン石に対する照射イオンの阻止能 dE/dx を示す。それぞれの点は、本実験ならびに他機関のビームラインも含めて確認を行ったものであり、白抜きのは飛跡が観測されなかった、もしくは今後検証予定のものである。灰色は先行研究^[18]による Ne イオン照射を示す。

Fig. 11 (a), (b), (c), (d) に対応した飛跡の光学顕微鏡画像の例を Fig. 13 に示す。この結果から、過去の先行研究で議論されていた一次イオン化率が飛跡形成能とよく相関していることが確認でき、さらに、白雲母における電離損失が支配的な速度領域に飛跡形成の閾値は約 10 MeV/mg/cm^2 であることが確認された。また、これらの飛跡データを用いて、エッチング速度等の基礎データを取得した。350 MeV Au 照射したカンラン石の光学顕微鏡画像を Fig. 14 に示す。カンラン石でも本研究において照射したエネルギー領域について飛跡形成が確認され、また、それよりも dE/dx の低い高エネルギー側の Xe イオンにおいても飛跡形成が確認できた。115 MeV/u の Xe については、飛跡形成が確認できず、カンラン石における本エッチング条件下での飛跡形成閾値は、約 16 MeV/mg/cm^2 であることを明らかになり、これらの試料からエッチング速度と dE/dx の関係を導出し、カ

Figure 11. Relationship between dE/dx -energy (left) and primary ionization-energy for muscovite mica. Each points are condition confirmed in this test, and grey point is the result by previous study of [17].

[R4-2]

ンラン石における電荷識別能の評価を進めている。

白雲母については、先行研究においてすでに検証されているエネルギー領域ではあるが、飛跡検出性能を独自に評価を行い、先行研究と無矛盾な結果を得ることができた。これらの基礎データは、今後の暗黒物質や宇宙線研究における検出性能指標の基準となる。また、電子軌道速度程度のエネルギー損失能に対する検出性能の理解も必要不可欠である。カンラン石については、これまでエッチングによる飛跡検出に成功した実験が世界的に限られている中で、本研究でエッチング処理も含めた飛跡検出を確認できたことは非常に重要である。特に、宇宙線分析において重要なステップであり、今後、電荷識別能やエネルギー測定精度の検証を進め、宇宙物理学への展開を図っていく。

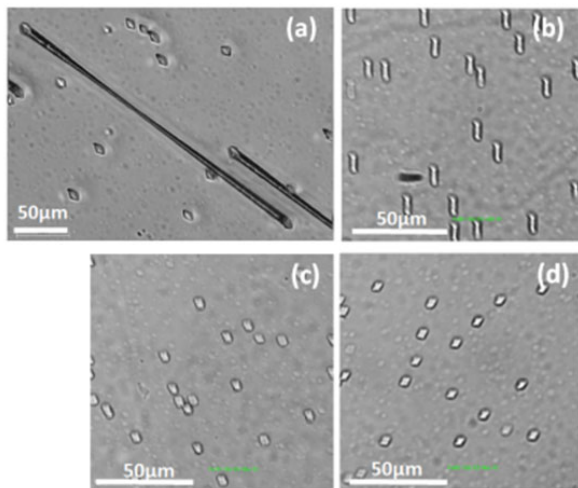


Figure 13. Optical microscope image of chemical etched tracks. (a) Xe (36 MeV/u), (b) Fe (60 MeV), (c) Fe (10 MeV), (d) Fe (5 MeV)

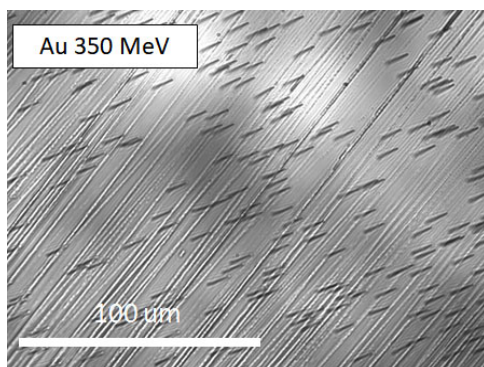


Figure 14. Optical microscope image of etched tracks of Au (350 MeV) on olivine. Black line around 10-15 μm are ion tracks and long diagonal lines are polished marks on the surface.

参考文献

- [1] H. D. Betz, "Charge States and Charge-Changing Cross Sections of Fast Heavy Ions Penetrating Through Gaseous and Solid Media", *Rev. Mod. Phys.* 44, 465, 1972
- [2] M. Imai et. al., "Charge state distribution and its equilibration of 2 MeV/u sulfur ions passing through carbon foils", *Nucl. Instrum. Meth.* B230, 63, 2005
- [3] M. Imai et. al., "Charge state evolution of 2 MeV/u sulfur ion passing through thin carbon foil", *Nucl. Instrum. Meth.* B256, 11, 2007
- [4] M. Imai et. al., "Equilibrium and non-equilibrium charge-state distributions of 2 MeV/u sulfur ions passing through carbon foils", *Nucl. Instrum. Meth.* B267, 2675, 2009
- [5] M. Imai et. al., "Equilibrium and non-equilibrium charge-state distributions of 2.0 MeV/u carbon ions passing through carbon foils", *Nucl. Instrum. Meth.* B354, 172, 2015
- [6] M. Imai et. al., "Stripping features of 2-MeV/u sulfur-ion beams penetrating carbon foils", *Nucl. Instrum. Meth.* B520, 13, 2022
- [7] I. Yu. Tolstikhina, M. Imai, V.P. Shevelko., "Mechanisms of non-adiabatic charge-exchange transitions in slow collisions of W ions with He, Ar and Kr atoms", *Nucl. Instrum. Meth.* B535, 241, 2023
- [8] S. Tomita et. al., "Nonadditivity of convoy- and secondary-electron yields in the forward-electron emission from thin carbon foils under irradiation of fast carbon-cluster ions", *Phys. Rev. A* 73, 060901(R), 2006
- [9] S. Tomita, et. al., "Measurement of backward secondary-electron yield under molecular ion impact coincident with emerging projectiles", *Nucl. Instrum. Meth.* B354, 109, 2015
- [10] Y. Shiina, et. al., "Measurement of Auger electrons emitted through Coster-Kronig transitions under irradiation of fast C_2^+ ions", *Nucl. Instrum. Meth.* B460, 30, 2019
- [11] A. Inoue, "Stabilization of metallic supercooled liquid and bulk amorphous alloys" *Acta Mater.* 48 (2000) 279
- [12] A. Iwase, F. Hori, "Modification of Lattice Structures and Mechanical Properties of Metallic Materials by Energetic Ion Irradiation and Subsequent Thermal Treatments", *Quantum Beam Science*, 4, 17 (2020) 4010017
- [13] M. Ochi, H. Kojimaa, F. Hori, Y. Kaneno, S. Semboshi, Y. Saitoh, Y. Okamoto, N. Ishikawa, A. Iwase, "Effect of elastic collisions and electronic excitation on lattice structure of NiTi bulk intermetallic compound irradiated with energetic ions" *Nucl. Instrum. and Meth. B* 427 (2018) 14-19A. Iwase, F. Hori, *Quantum Beam Sci.*, 4, 4010017A, 2020
- [14] H. Amekura, et al., "Ion tracks in silicon formed by much lower energy deposition than the track formation threshold", *Scientific Reports* 11, 185 2021
- [15] H. Amekura, et al., "Mechanism of ion track formation in silicon by much lower energy deposition than the formation threshold", *Physica Scripta* 98, 045701, 2023
- [16] H. Amekura, et al., "Latent ion tracks were finally observed in diamond", *Nature Commun* 15, 1786, 2024
- [17] Sebastian Baum et al., "Mineral detection of neutrinos and dark matter. A whitepaper", *Physics of Dark Universe*, 41(2023)101245
- [18] R. L. Flescher et al., "Criterion for Registration in Dielectric Track Detectors", *Phys. Rev.* 156 (1967) 353