



小型加速器が開く世界

埴 輝 雄*

加速器と言えば原子核物理学の研究に用いられる複雑で近寄り難い大型装置であって、材料の科学や技術には直接関係は無い、と一般に受け取られているようである。確かに、重イオンを数十から数百 MeV のエネルギーまで加速する能力のある装置に対しては上に述べたことは当てはまるが、数 MeV 程度の小型加速器は低価格、運転の容易さなどの利点を受つ、低エネルギーでは考えられないような世界を開くことが出来るのである。

幸い、特別設備として1.7 MeV タンデム加速器を主体とする実験システムの予算が認められ、今年中に夢見た世界に一步踏み入ることが可能となった。今や夢の世界のパノラマを示さねばならない時機となったようである。

1 表面・界面の構造解析

結晶表面や結晶間の界面は腐食や触媒作用は勿論、半導体素子の性能に直接関与しているので古くから強い関心が寄せられてきた。現在では研究手段も高度化し、“よく規定された表面”に対する研究が広く行われている。ところが、表面の原子配列（以下表面構造と呼ぶ）の定量的知識は極めて少ない。表面は結晶の周期性が失われる場所であるため定量的解析が著しく困難となるためである。特に Si や GaAs といった電子デバイスの基礎となっている半導体結晶の表面は少なくとも4原子層に及ぶ大きな再配列構造をとっている証拠はあるが、未だその詳細は知られていない。バルクの物性の理解が結晶構造の知識の上に成立していることを考えると、表面科学の基礎は未だ薄弱と言わねばならないのである。

表面構造解析の有力な手段の一つとして低エ

ネルギーイオン散乱分光法 (LEIS, 又は ISS と略称される) がある。正イオンのビームで原子を照射するとき、イオンが原子核の正電荷で反発される結果、原子の背後にイオンビームの入り得ない円錐型の領域 (シャドーコーンと呼ばれる) が出来る。LEIS のプローブとして、1 KeV 程度の He^+ , Ne^+ 等が主に使われるが、これらのイオンの作るシャドーコーンの半径は、入射イオンの種類、エネルギー、ターゲット原子の種類によって変化するが、原子から 1\AA 離れた位置ではほぼ 1\AA 程度で、原子間距離の程度と考えてよい。また、散乱されたプローブイオンのエネルギーは衝突原子の質量と散乱角によって決まる。そこで、イオンビームの入射方向、散乱方向を変化させて、散乱イオンのエネルギー分析を行いシャドーコーンの概念を用いれば表面最外層および第2層に存在する原子の種類およびその相対位置を解析し得ることになる。しかし、最外層感度の代償としてイオンの中性化、多重散乱、再イオン化等の難問が介在し定量的結論に達することは極めて難しい。

MeV イオンビーム散乱 (HEIS) の場合、シャドーコーンの半径は 10^{-2}\AA のオーダーとなり、核衝突による散乱確率は LEIS に比して著しく小さい。また、固体検出器によるエネルギー分析が可能となるので中性化を考慮する必要もない。これらは共に定量的解析を容易にする因子となっている。今、主要な結晶軸を考えると、その方向に原子の鎖が整列しているとみなされる。この方向に MeV イオンビームを入射すると、イオンにとって結晶内原子鎖の間隔は充分広いので、大多数のイオンは原子衝突による大角度の散乱を受けないで結晶軸方向に深く侵入することが出来る (チャネリングと呼ばれる)。ただし、原子鎖間の空間に存在する電

*埴 輝雄 (Teruo HANAWA), 大阪大学工学部, 電子ビーム研究施設, 教授, 理博, 表面物理学

子との衝突によって徐々にエネルギーを失う ($10\sim 10^2$ eV/Å) ので高エネルギーを保存し得る深度は μm のオーダーとなる。チャネリングと背面散乱とを組み合わせることにより表面層の構造、格子間原子の種数と密度、表面下 $1\ \mu\text{m}$ 程度に存在する界面の構造等に関する定量的データを得ることが出来る。しかし、HEIS のみでは、シャドーコーンが細すぎるため複雑な表面構造の解析が可能とは思われない。ここで、二次元周期構造を直接与える低速電子回折、表面最外層に関する情報を粗い尺度で与える LEIS と定量性に勝れた HEIS とを組み合わせる方法の優越性が生まれる。われわれはこの線に添って従来水準を越える表面構造の研究を進めようとしている。

2. 表面における水素分析

表面における水素の検出に対してはオージェ電子分光法 (AES), LEIS とともに無力であり、二次イオン質量分析法 (SIMS) は能力はあるが定量性に問題がある。このようなわけで水素が表面過程において如何なる役割を果たしているかは未だ殆んど知られていない。幸い、若干の重イオンは低 MeV 領域で H と共鳴核反応を起こすので、試料中におけるイオンエネルギー損失の割合、すなわち、イオン阻止能のデータを組み合わせることにより共鳴エネルギー幅に対応する深さ分解能で表面附近の H の分布を測定することができる。最も鋭い共鳴を起こす反応は ${}^1\text{H}({}^{15}\text{N}, \alpha\gamma){}^{12}\text{C}$ なる反応で、共鳴エネルギー $E_R=6.38$ MeV, 共鳴幅 $\Delta E_R=13$ KeV である。 ΔE_R に対応する厚さは物質により異なるが表面で 100Å 程度で、H の検出感度は 10^3 ppm 程度である。なお、水素量はこの反応で放出される 4.4 MeV の γ 線を検出することにより行われる。

タンデム加速器は負イオンを加速管中央の高電位の電荷変換器まで加速し、ここで電子をはぎ取って正イオンに変換し、再び加速するという方式をとるので、安定な負イオンを作らない N はそのままでは加速できない。しかし NH^- , NH_2^- 等の負の分子イオンは容易に生成し得るので、これを加速し、電荷変換器内で分裂した

粒子の中、 N^{3+} のみを選び出せば 1.7 MeV のタンデム加速器で 6.6 MeV のエネルギーに達することができ、 $E_R=6.38$ MeV をやや上回るので表面下 $1\ \mu\text{m}$ 程度までの H のプロファイルが得られるであろう。しかし、核反応の生起確率は極めて小さいので測定に長時間を要し、ビームによる温度上昇の恐れがある。一般に H は物質中を非常に容易に拡散し得るので実験に際しては試料の冷却を必要とする。

核反応とは別に、より大きな確率で重イオン衝突による H の反跳が起こる。この現象は KeV 程度の低エネルギーでも見られるが、反跳 H 原子を他の反跳粒子や散乱粒子と区別する操作が面倒で、定量性、感度共に大幅に低下する。MeV オーダーのエネルギーを有する反跳 H は Al 箔を通過することができ、重粒子は通過し得ないので、高エネルギーイオンビームを表面と小さな角度で入射させ、前方に飛び出した H を測定することは簡単で、核反応より 1 桁以上高感度で表面水素の検出が可能となる。

3. 超高感度分析—PIXE と AMS

PIXE (ピクシー) とは粒子励起 X 線放出の頭字を取ったもので、高速イオンにより特性 X 線を励起し、そのエネルギーを分析して元素分析を行う方法である。特に約 2 MeV に加速されたプロトン (H^+) は非常に大きな内殻電子の電離確率、すなわち、高い特性 X 線放出能力を持って居り、測定の障害となる制動放射による連続 X 線の放出も少ない。両者は相俟って現在広く用いられている電子励起 X 線分析 (EPMA, 電子プローブマイクロアナリシス) の $1,000$ 倍の高感度を実現する。またプロトン励起の場合、感度は元素によって余り変化せず、平均相対感度は 10^{-6} 、すなわち、ppm の検出能力を示している。検出可能な物質の最小量は、特別な操作なしで 10^{-12} g とされているので試料として 10^{-6} g あれば良い。プロトンビームの直径は 1mm 程度が普通であるが、 $1\ \mu\text{m}$ が現在のところ絞れる限界となっている。また、ビームを大気圧中に取出して分析できるという大きな利点もある。結局、 0.1% 感度の EPMA は主成分の微小領域分析に適し、PIXE

は全微量成分の迅速同時分析（数分程度）に威力を発揮すると言える。この PIXE の特徴を生かした応用の世界を紹介することにしよう。

(1) 大気中の粉塵、フィルターを通して数日間空気を濾過すれば蛍光X線や原子吸収分析に必要な量の微粒子を集めることができるが、粒度分布や時間変化まで調べようとするとは PIXE 以外の方法では手が付けられない。(2) 医学的応用、生体中には 10^{-6} ~ 10^{-7} の濃度で多種類の元素が含まれている。マイクロビーム PIXE により毛髪断面を走査分析した結果は Fe, Ca は外層部に、Zn は全断面にほぼ均一に分布し S は中心部に多く外層には殆んど存在しないことを示している。また、病氣と血液や臓器における微量金属元素の分布との相関等も調べられ、今後病氣診断の有力な手段となる可能性がある。(3) 考古学、PIXE の大気中、非破壊分析の能力は貴重な考古学試料や美術品の鑑定に最適である。微量元素の種類や存在比は物質が得られた場所や製造方法（時代）によって変化するので、物質の指紋の役割を果たすからである。ただし PIXE の分析深度は $100\mu\text{m}$ 以下の表面層に限定されるので、試料表面がきれいで、しかも内部成分をよく代表していることが要求される。この分野の実例を二、三紹介しよう。ゲーデンベルグの聖書の初版本のインキを分析した結果は、これがカーボンではなく、Pb, Cu を含む油性ペイントを黒くなるまで加熱して製造したらしいこと、各頁の Cu/Pb 比より1回1葉ではなく1回1頁を印刷したこと、ある時機は2台ではなく4台のプレスを使用したことなどを明らかにしている。また黒曜石細工における微量成分と産地との相関や、微量元素の相対濃度による古代陶片の同定の可能性なども調べられている。PIXE のこの分野への応用は始まったばかりで、今後の発展が期待されている。(4) 環境科学、水中に含まれる微量元素のあるものは生体中で濃縮されて有害な影響を及ぼす可能性がある。長年月における濃縮を考慮すると ppm (10^{-9}) のオーダーの感度では不十分となり、ppb (10^{-9}) から ppt (10^{-12}) に及ぶ感度が要求されるであろう。このような感度はキレート抽出法などの予備濃縮を必要とす

るが、これにより海水中には存在する ppt オーダーに至る約20種類の微量元素が定量されている。

以上のように PIXE は微量成分の迅速同時分析という特徴を以って複合効果の研究を促進するものと期待される。

AMS は加速器質量分析法の略称でごく最近スタートしたばかりの新しい分析法である。現在の分析法の中、最も高感度な元素分析の方法は2次イオン質量分析法 (SIMS) であるが、すべての元素に対して ppb の感度を得ることは難しい。SIMS における最大の難点は多量の分子イオンが発生することで、分子イオンと単原子イオンとを区別するには原子の質量欠損を利用する以外に途はない。その場合、非常に高い分解能が要求され、高感度とは両立しない。AMS では Cs イオンを用いて固体試料をスパッターし、負イオンを作り、これを質量分析してタンデム加速器に導入する。このとき分子イオンの大部分は電荷変換器を通過するとき分裂し、単原子イオンを作る。加速器から射出されたイオンの中、多価イオンを選び出せば、分子イオンは含まれていないと考えられ、透過率の高い分析器による超高感度分析が可能となり、現在 ^{14}C では ppq (10^{-15}) を越える感度を得られている。ただし超高感度では、質量が同じで原子番号 Z が異なる同重体イオンやエネルギーが僅かに異なる隣接同位元素イオンによる妨害を除く必要があり分析はかなり面倒である。現在 AMS が活躍している分野は考古学における ^{14}C による年代測定と、 ^{10}Be の分析による地球化学的研究であるので、以下に概略を示そうと思う。

^{14}C や ^{10}Be は大気圏上層で宇宙線によって作られ地表に降下してくる核種で、共に β 崩壊し半減期はそれぞれ5730年および160万年である。半減期は時間を測る尺度として使えることに注目し、炭素の普遍性を考慮すると ^{14}C は考古学的時間決定に極めて有用であることが判る。現在地上における同位体比 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ は 1.2×10^{-12} で生体中では代謝によりこの平衡値が保たれている。生体が死に代謝が停止した瞬間から ^{14}C は減少し始め10万年経つと同位体比

は 6.7×10^{-18} という値になる。同位体比は β 放射能を測定すれば求めることができるが、これを AMS と比較してみよう。ごく新しい年代の試料を測る場合、放射能測定法では試料 1 g を用いて 12 時間測定を行っても誤差は約 50 年となるに反し、AMS では 1 mg 以下の試料、15 分の測定時間で 25 年程度の誤差となり、AMS の優位は明らかである。年代が古くなるにつれて AMS は益々威力を発揮し、数万年の年代になると AMS の独壇場となる。ただし、1.7 MV タンデムでは 2 万年程度が限界と思われる。 ^{10}Be は過去の宇宙線強度を反映しているので、深海底や極地の氷の中の ^{10}Be の分布の測定は太陽活動、元素の地球的循環、地磁気変動などの情報を与えることができる。また原油中の ^{10}Be は石油の生成の年代を与えるであろう。技術の世界に目を転ずれば、Si 中に含まれる電氣的に活性な不純物は 10^{-12} 程度と推定されているが ppb 以下の不純物は僅かな元素を除いて判っていない。AMS はその限界を打破し Si 技術の新しい発展に導くかも知れない。

4. 衝突現象の応用

MeV イオンが物質と衝突するとき核子当たり 20 KeV 程度までは電子との衝突によってエネルギーを失って行く。重イオンと電子との大きな質量差により物質中における高エネルギーイオンの軌道の直線性は極めて良好で、低エネルギーまで減速されて始めて核との衝突によりランダムに散乱される。このような特徴を生かして以下のような応用が考えられる。

(1) 深いイオンインプランテーション、MeV イオンを物質に打ち込むと初期減速過程では物質に大きな損傷を与えず数 μm の深度に打ち込み層を作ることができる。これを利用すれば半導体技術においては SiO_2 や Si_3N_4 等の絶縁膜や金属電極膜を貫通して Si 中にドーピング層を作ることができるので、プロセス工程を大幅に減らすことや新しいデバイスの作成が可能となる。なお MeV 重イオン照射に伴う独特なアニーリング効果も見出されている。(2) リソグラフィ、電気抵抗の高い薄膜に MeV イオンを打ち込むと、直線性の良い飛跡が潜像となって残り、エッチングにより直径 100\AA 程度の穴を作ることができる。実際この方法で作られたフィルターが実用に供されている例もある。もし多量のイオンをマスクや微小組織を通過させて薄膜中にイオン飛跡を作るならば 100\AA 程度の分解能でレプリカを作るとは容易である。この際マスクや組織は下地に密着させる必要はない。

以上 MeV イオンビームの科学や技術における応用の世界を瞥見した。核物理学で集積された技術やデータの物性分野への応用は始まったばかりで、今後大きな発展が予想される。現在建設中の実験システムは少ない人数で動かし得る限界と思われ、上記のテーマをすべて取上げることは当面できそうもない。しかし私共はできる限り速やかにシステムの定常運転を実現し、可能なところから各方面の研究者と協同して新しい世界を開拓して行き度いと念願している。