

高電離多価イオンビームの応用

本橋健次*

1. はじめに

イオンビームテクノロジーは現代の産業を支える基盤技術に成長し、様々な場面で広く利用されている。半導体製造工程における洗浄・微細加工・不純物注入・特性評価は言うまでもなく、食品・植物・生体材料まで含む広範な物質の改質や加工に、イオンビームが利用されるようになった。これは、イオンビームの持つ制御性と直進性の良さに起因すると考えられる。さらに、イオンビームの生成と制御に欠かせないイオン源やビーム輸送技術が進歩し、上質なイオンビームを簡単に入手できるようになったことが、普及につながった。

通常利用されているイオンは、正または負に帯電した一価のイオンであり、 A^+ または A^- と表記する。 A^+ は中性原子 A から 1 個の電子を取り去った (=電離した) イオンであり、 A^- は原子 A に 1 個の電子を余分に与えた (=付着した) イオンである。これら 1 価のイオンは、 $\pm e$ の電荷 (e は素電荷: $e = 1.602C$) を持つため、電界や磁界を加えることにより、加減速・偏向・集束・発散が可能であり、その運動エネルギーを利用して分析や加工が行われる。

一方、2 個以上の電子が電離した、または、付着したイオンは多価イオンと呼ばれる。 q 個の電子を電離した場合 A^{q+} 、付着した場合 A^{q-} と表記され、これらは $\pm qe$ の電荷を持つため q 価の多価イオンと呼ばれる。負の多価イオン (A^{q-}) の価数には大雑把に 3 ~ 4 程度の上限值があるが、正の多価イオンの場合は、すべての電子が電離するまで価数を 1 つずつ上げていくことが可能である。例えば、すべての電子が電離した、すなわち原子核だけのウランイオン (U^{92+}) が、1994 年に初めて人工的に地上で生成された¹⁾。

このように、価数の高い正の多価イオンは高電離多価イオン (HCI: Highly Charged Ions) と呼ばれ、1970 年代から盛んに研究され始めた。近年、電子サイクロトロン共鳴イオン源 (ECRIS: Electron Cyclotron Resonance Ion Source) と電子衝撃型イオン源 (EBIS: Electron Beam Ion Source) の技術開発が進展し、比較的容易に高電離多価イオンを生成できるようになった。

2. 高電離多価イオンの特徴

高電離多価イオンの最大の特徴は、大きな静電的内部エネルギーである。価数 q の多価イオンの内部エネルギーは 1 価イオンのそれのおおよそ q^2 倍である²⁾。例えば、水素イオン (H^+) の内部エネルギーは 13.6eV であるのに対し、ウランイオン (U^{92+}) のそれは約 750,000eV²⁾ に達する。そのため、高電離多価イオンはたとえ静止していても、他の物質に対して十分な仕事をする能力がある。これは 1 価イオンと本質的に異なる特徴である。さらに、多価イオンを電位差 V で静電的に加速する場合、多価イオンが持つ運動エネルギーは qeV となり、1 価イオンの q 倍になる。ある電位差に対し、1 価イオンの持つ運動エネルギーの価数倍の運動エネルギーを持つという、当たり前にして重要な性質も見逃せない。

高電離多価イオンのもう一つの大きな特徴は、物質との反応性が高く、しかも、それが状態選択的に起こりやすいという点である。物質との反応性の高さは、衝突断面積³⁾ という物理量で定量化することができる。衝突断面積は衝突の速度や標的の物性に依存するが、極めて大雑把に言えば、入射するイオンの価数 q に比例する⁴⁾。そして、その反応は、入射多価イオンの価数 q と標的物質の電離エネルギー I の関係で決まる特定の状態へ向かって選択的に起こることが、最近の研究から明らかになってきた⁵⁾。

以上、高電離多価イオンの特徴をまとめると、1 価イオンに比べて内部エネルギーが q^2 倍、運動エネルギーが q 倍、衝突断面積は q 倍となることから、物質に対する影響が極めて大きく、その反応が状態選択的に起こる、ということである。このように、高電離多価イオンは 1 価イオンとは全く異なる性質を持つ「新しい粒子」と言っても過言ではない。

3. 高電離多価イオンビームの応用

高電離多価イオンは特殊な状態の原子であり、それ自身の物性が量子電磁力学をはじめとする最先端の研究テーマであるが、それについてはここでは割愛し、筆者の研究例を交え、応用研究の最新例をいくつか紹介する。

3.1 重粒子線がん治療

放射線治療は、エックス線・ガンマ線等の高エネルギー電磁

*東洋大学 理工学部生体医工学科

波や中性子を用いる非荷電粒子線治療と、電子・パイ中間子・陽子・重イオンを用いる荷電粒子線治療の二種類に大別される。このうちエックス線・ガンマ線・電子線は、外科・化学療法で効果の薄いがんに対して、国内でも 1960 年代から治療が行われてきた。1970 年代に入りサイクロトロン加速器⁶⁾の普及に伴い、中性子線や陽子線の治療が始まり、優れた治療成績が上げられた。特に、陽子線は正常細胞への被ばく量がそれまでの他の放射線治療に比べて格段に小さく、副作用の小さな治療として脚光を浴びた。1990 年代に入り、シンクロトロン加速器⁶⁾が普及すると、陽子より重い炭素イオンを用いる重粒子線治療が開始された。重粒子線は正常細胞への被ばく量が陽子線よりさらに小さく、しかも、根治効果が高い。その一方で、体内深部 (30cm 程度) まで重粒子を運ぶには、数百 MeV (1MeV = 1,000,000eV) に及ぶイオンの加速が必要であり、大規模な治療装置の建設と運転にかかる莫大な経費が普及の大きな障害となっている。そのため、加速器の小型化・簡素化の研究開発が現在急ピッチで進んでいる。図 1 に一般的な重粒子線治療装置の概略を示す。イオン源で生成した低価数のイオンを磁石で質量/価数別に分離した後、入射器と線形加速器により数 MeV まで加速し、さらに、ストリッパーと呼ばれる装置を通して価数を上げてからシンクロトロン加速器に入射し、数百 MeV のビームを生成する。前述のように、高電離多価イオンは等しい電位差で 1 価イオンの価数倍の運動エネルギーに加速されるので、高エネルギーの粒子線加速には不可欠である。すなわち、ビーム強度の大きな高電離多価イオン源は、後段のすべての装置、すなわち重粒子線治療装置全体の小型化・簡素化のための鍵を握っている。

図 2 は筆者が開発した永久磁石利用の EBIS 型高電離多価イオン源で、全長 40cm・消費電力 2W と小型・省電力ながら Ne^{10+} , Ar^{17+} , Kr^{29+} を発生する⁷⁾。図 3 は、このイオン源で生成された Ar 多価イオンの価数分布である。今後、ビーム強度を上げるための技術開発を進める予定である。

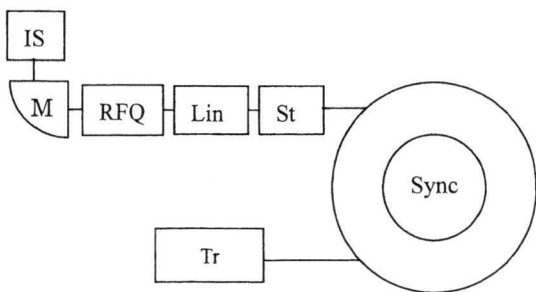


図1.重粒子線治療装置の概略図
IS イオン源, M 磁石, RFQ 入射器(四重極レンズ),
Lin 線形加速器, St ストリッパー, Sync シンクロトロン
加速器, Tr 処置室

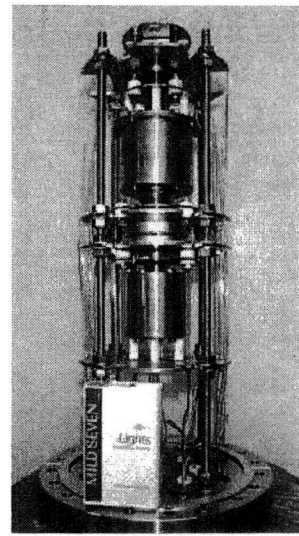


図2.開発した小型高電離多価イオン源⁷⁾
(大きさの目安として、たばこを置いた。)

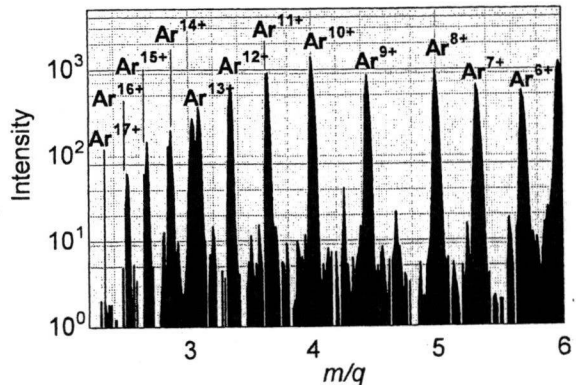


図3.開発した小型高電離多価イオン源により生成したアルゴン (Ar) 多価イオンの価数分布⁷⁾

3. 2 表面化学組成分析

前述したように、高電離多価イオンは物質と強く反応し、物質から多数の電子を奪う。その結果、気体や固体の物質の表層に存在する原子を多数電離し、それらを正の二次イオンとして放出させる。放出した二次イオンの質量を測定することにより、高感度の表面化学組成分析ができる。

このような高電離多価イオン励起による二次イオン質量分析法(SIMS: Secondary Ion Mass Spectrometry)の特徴は、物質表面及び軽元素に対して高い感度を持つことである^{5), 8), 9)}。特に、水素原子に対して極めて感度が高く、例えば高電離多価イオンを照射中の固体からは、表面に化学吸着した水素原子が、 $q^3 \sim q^5$ に比例する高い収量でイオン(陽子)として脱離する^{8)~10)}。水素分子(H_2)は蒸気圧が最大の気体であり、極高真空下でも残留する。微細化が進み、不純物がデバイス特性に敏感に影響する

今日では、水素不純物の除去や評価は重要である。また、水素原子を多量に含む有機・生物系材料における水素密度の定量分析も重要視されており、有機物半導体や燃料電池の開発、たんぱく質合成など、最先端工学への応用が期待される。

前述したような反応の状態選択性に注目し、筆者が開発を進めている固体表面分析法の一つに、原子深さ分解能を有する高感度 SIMS^{(11)~(13)} がある。図 4 は窒化ガリウム (GaN) 単結晶表面の表面第 1 層を、Ar⁸⁺ イオンによって組成分析した SIMS スペクトルである⁽¹¹⁾。ガリウム (Ga) 原子で終端された (0001) 表面からは二次イオンの Ga⁺ が検出された一方、窒素 (N) 原子で終端された (000 $\bar{1}$) 表面からは N⁺ が検出された。このことは表面第 1 層の選択的組成分析が行われたことを意味する。なぜなら、もし表面 2 層以上深くにある原子まで検出する場合、(0001) 面からも (000 $\bar{1}$) 面からも同じように Ga⁺ と N⁺ が検出されるはずだからである。極めて低速の Ar⁸⁺ が表面第 1 層にある原子だけから電子を奪い、これらが二次イオンとして放出されたために、このような結果が得られたと考えられる。

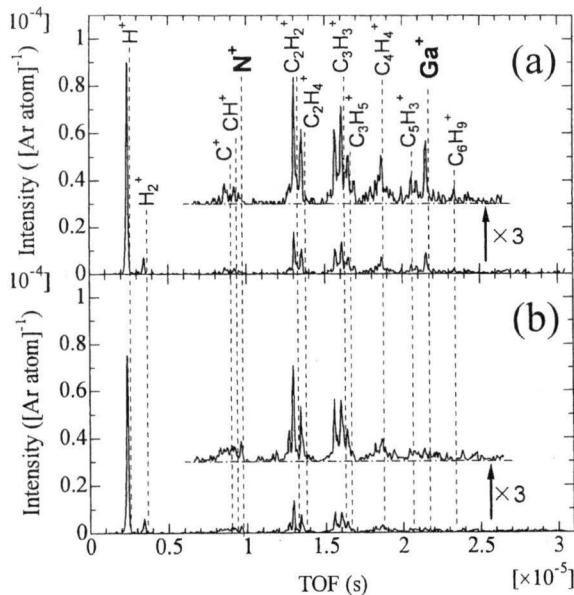


図4. Ar⁸⁺イオンビームによる (a) GaN(0001)表面と (b) (000 $\bar{1}$) 表面における最表面原子の飛行時間型二次イオン質量分析結果⁽¹¹⁾

3.3 マイクロビームテクノロジー

一般的なイオンビームは、直径数 mm で 1 秒間当たりのイオン数密度が $10^{10} \sim 10^{16}$ 個/cm² 程度のものである。そのため、イオンビーム 1 回の照射では、その照射箇所になくとも 10^{10} 個程度のイオンが物質に入射する。このように多数のイオンが一度に入射する場合、ビームを集束することが困難であ

り、微細化には限界が生まれる。

これに対し、入射イオン束密度を減らし、数 μm 程度まで直径を小さくしたイオンビームを用いて物質の加工や分析を行う、いわゆるマイクロビームテクノロジー⁽¹⁴⁾ が研究され始めた。一つの細胞に 1 個の高エネルギーイオンを注入する技術⁽¹⁴⁾ の開発も進められている。細胞に進入した高エネルギーイオンが、その進入経路に沿ってミクロな反応を誘発することを狙った技術である。現段階では大がかりな加速器が必要であるが、高電離多価イオンを使って装置を小型化することも可能である。また、高電離多価イオンの大きな内部エネルギーを物質の改質・加工に有効に利用することもできるため、高エネルギーイオンによるマイクロビームとは異なる利用法が考えられる。

高電離多価イオンビームのマイクロビームテクノロジーへの応用に対し、さらに特筆すべき重要な技術の開発が進んでいる。それは、絶縁体の毛細管内に高電離多価イオンビームを通すというビーム輸送技術である。ビーム輸送の原理は未だによく分かっていないが、あたかもレーザー光が全反射を繰り返しながらガラスファイバーを伝搬するがごとく、高電離多価イオンが毛細管を通過⁽¹⁵⁾ する。

毛細管の先端をナノメートルサイズに微細化することにより、極微領域へのイオン照射が可能であり、様々な分野への応用が期待されている。

4. まとめ

高電離多価イオンの持つ特殊性は、従来のイオンビームテクノロジーに変革をもたらす可能性がある。特に、水素含有物質の表面加工・分析に威力を発揮するため、生物・医学領域への応用が期待される。

例えば、高強度の高電離多価イオン源は、重粒子線治療装置の小型化・簡素化の鍵を握っている。また、筆者は表面第 1 層の選択的組成分析に成功し、現在、原子層別の表面化学分析装置の開発に取り組んでいる。高電離多価イオンとマイクロビームテクノロジーを組み合わせることにより、まったく新しい極微の物質加工・分析ツールを実現できる可能性がある。

参考文献

- 1) R. E. Marrs, S. R. Elliott, and D. A. Knapp, Phys. Rev. Lett. **72** (1994) 4082.
- 2) 大谷俊介, 桜井誠, プラズマ核融合学会誌 **73** (1997) 1063.
- 3) 例えば, 金子洋三郎, 化学のための原子衝突入門, 培風館, pp. 1.
- 4) M. Kimura *et al.*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28** (1995) L643.
- 5) 本橋健次, プラズマ核融合学会誌 **83** (2007) 665.

- 6) 菊池正士他監修・福田信之他編, 加速器, 共立出版, pp.107.
- 7) K. Motohashi, A. Moriya, H. Yamada, and S. Tsurubuchi, Rev. Sci. Instrum. **71** (2000) 890.
- 8) K. Motohashi, S. Tsurubuchi, and A. Koukitu, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B **232** (2005) 254.
- 9) K. Motohashi and S. Tsurubuchi, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B **264** (2007) 15.
- 10) M. Tona *et al.*, Surf. Sci. **600** (2006) 124.
- 11) K. Motohashi, K. Hosoya, M. Imano, S. Tsurubuchi, and A. Koukitu, Surf. Sci. **601** (2007) 5304.
- 12) K. Motohashi, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **7** (2009) 21.
- 13) K. Motohashi, M. Flores, and Y. Kanai, J. Phys.: Conf. Ser. **163** (2009) 012080.
- 14) 小林泰彦ら, 放射線生物研究, **43** (2008) 150.
- 15) T. Ikeda *et al.*, Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 163502.