

高エネルギークラスター

High Energy Cluster Beam

岩 田 康 嗣*

Yasushi Iwata

1. クラスターとは

日頃目にしている固体の内部には、直径10nmの領域に通常数万個の原子が存在する。丁度この程度の数から数個に至る原子で構成される粒子を一般にクラスターと呼び、これより大きな微粒子や超微粒子と区別している。クラスターには、炭酸ガスや水蒸気などの分子が凝集した分子クラスターと、金属や半導体の原子で構成される原子クラスターがあり、それぞれ原子や分子とも固体とも異なる特異な性質を示す。クラスターは3次元的に構造安定性を示し、直径1nm以上にもなるとその表面は幾種類もの結晶面を構成していることが観測されている。原子の数が1000個以下の小さなクラスター（これをマイクロクラスターと呼ぶ）では、表面原子が構成原子数の半分以上の割合を占め、固体の結晶表面よりも活性が高く、化学反応性に富んでいる。クラスター中の電子は高々数nmの3次元的空间に局在しており、2次元的面に局在する固体の表面電子状態とも、固体中の電子状態とも異なる特異な電子状態をとり、これがクラスターの電気的、光学的、磁氣的性質を特有のものにしている。こうしたクラスターの性質はそれを構成する原子数や原子組成及び構造に応じて極めて鋭敏に変化する。

2, 3の例を示そう。n個のナトリウム原子で構成される Na_n クラスターなどのアルカリ金属クラスターでは、構成原子数が $n = 8, 20, 40, 58, 92$ のものが特に生成され易いことが解っている¹⁾。原子核物理の分野で、その構造安定性を示すためにM.G.Mayer-J.H.D.Jensenが提案した原子核の殻模型に現れる魔法数に、アルカリ金属クラスターのこの数が対応していることから、クラスターの殻構造と呼ばれている。

コバルトの水素化合物で構成される Co_nH_m クラスター

* 電子技術総合研究所 エネルギー基礎部エネルギー物性研究室 研究員

〒305 茨城県つくば市梅園1-1-4

の水に対する反応性では、反応率がコバルト原子数 $n=87, 93, 96, 102, 105, 111, 120, 126, 132, 138, 148, 160$ で特に高くなることを見つかっている²⁾。コバルトクラスターではコバルト原子が正二十面体構造を形成しており、水素原子はクラスター表面の2~3個のコバルト原子に囲まれた位置を占有して吸着するため、通常は水分子が吸着できない。しかしコバルト原子が最も密に詰まる原子数よりそれぞれ1多い数（それが上記の数列に対応している）のコバルト原子で構成されたクラスターでは、コバルト原子が孤立しているために、そこに水分子が吸着できるためと解釈されている。

半導体は固体中の電子が光などを吸って励起状態になると、そこに電子とホール対（エキシトン）を形成する。このエキシトンの大きさは半導体の種類によって数nmから数10nmの径になる。固体中におけるエキシトン径程度のサイズをもつ半導体クラスターでは、励起電子とホールがより微小領域に局在するため、結果としてエキシトンの励起エネルギーは高くなる。従って半導体クラスターの光吸収特性が固体半導体の吸収波長より短い側へシフトする。固体中のエキシトン径より1.5倍の大きさをもつ Cd_nSe_n クラスターの光吸収特性は、固体の670nmに対して540nmにシフトすることが確認されている³⁾。

2. パルスパワーとしてのクラスター

クラスターのいま一つの特徴は、個々の構成原子が高エネルギーを持つまでにクラスターを加速した場合、固体と同程度に高い密度の高エネルギービームが生まれることであり、これが本主題の高エネルギークラスターである。問題にしているクラスターのエネルギーは、構成原子が個々に1 MeV/u（核子当たり $1 \times 10^6 \text{ eV}$ ）以上を持つ領域である。高エネルギークラスターが物質に入射した場合、クラスターサイズの微小領域には高いエネルギーが高密度で集中することにな

表1 高エネルギークラスターの高速パルス性とパワー密度の比較

	物質表面層の通過時間 (s)	電流密度		電力密度 (W/cm ²)
		(Na/cm ² s)	(A/cm ²)	
Na ₁₀₀ クラスター	1.8×10 ⁻¹⁶	2×10 ³¹	3×10 ¹²	7×10 ¹⁹
直流イオンビーム (1 mA/1 mm径)	連続	8×10 ¹⁷	0.13	3×10 ⁶

エネルギー = 1 MeV/u, 速度 = 1.39×10⁹ cm/s

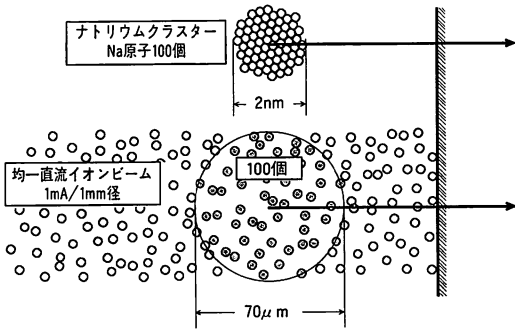
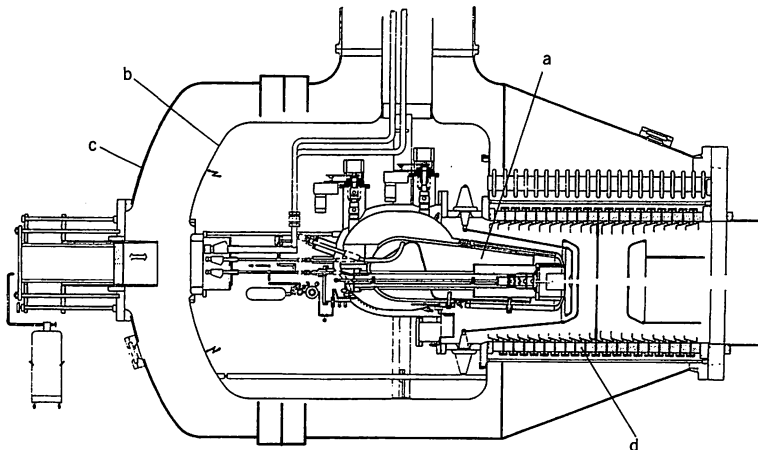


図-1 ナトリウムクラスタービームと均一直流イオンビームの空間原子密度の比較

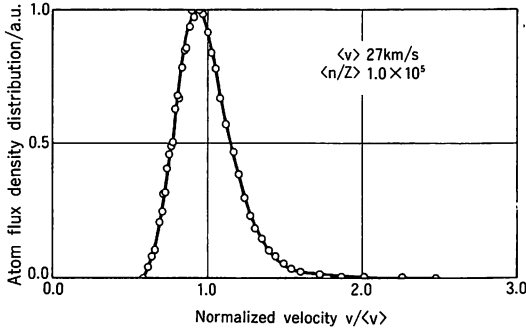
る。更に、高エネルギーを持つ微小サイズのクラスターは、非常に短い高速パルスビームでもある。従って高密度エネルギーと高速パルス性を有する高エネルギークラスターは、パルスパワーの最たるものと言えなくもない。

原子量23のナトリウム原子100個で構成される²³Na₁₀₀クラスターを例に、パルスパワーとしての具体的な値を求めてみよう。先ず²³Na₁₀₀のサイズは、ナトリウム結晶中でナトリウム原子100個の占める大き

さと考えると直径約2 nmである。結晶中とは異なり、クラスターの表面に出ている原子の外側に原子が存在しない分、実際のクラスターサイズは幾分これより大きくなると思われる。1 MeV/uに加速された²³Na₁₀₀クラスター的全運動エネルギーは2.3 GeV (2.3 × 10⁹ eV)になる。比較のために、1 MeV/uに加速された²³Na⁺イオンの均一な直流ビームを考える(図-1)。ビーム径1 mm、ビーム電流1 mAの大電流ビームを想定すると、ビーム中に²³Na⁺イオン100個の占める空間は径にして70 μmである。物質に入射した際の物質表面層を通過する時間、電流、電力密度について両ビームを比較したものが表1である。この比較からも明らかなように、高エネルギークラスターの生み出す電力密度は通常のイオンビームでは到底得られない大きさであり、これは最も高密度のエネルギーが得られるパワーレーザーの到達している出力10¹⁹ W/cm²よりも更に高い値である⁴⁾。また、現在最も短いパルスが得られるレーザーでは、パルス幅が10⁻¹⁵ sの領域に達しようとしているが、高エネルギークラスターでは更に短いパルスビームになる。



a) ヘリウム用クライオスタット b) 電場整形用ライナー c) アルミ製タンク d) 加速管 (文献10).
図-2 カールスルーエ大学の1 MVクラスターイオン加速器



加速電圧は353kV (文献11)
 図-3 H₂ クラスタイオンビームの速度分布

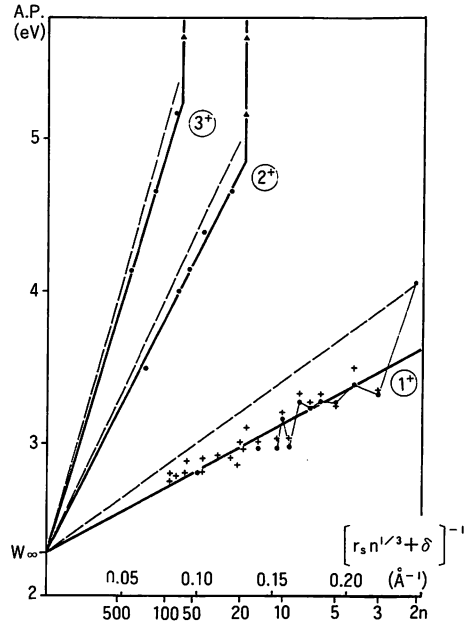
3. クラスタ加速

3.1 クラスタ加速の現状

現在のところ、構成原子が1 MeV/u以上のエネルギーを持つクラスタイオンビームの生成には至っていない。アルゴンヌ研究所のGemell達のグループを始め⁹⁾、ニューヨーク大学⁶⁾、リオン大学⁷⁾、ワイズマン研究所⁸⁾において、H₂⁺、HeH⁺、CH⁺、NH⁺、OH⁺、H₃⁺、CH₂⁺、NH₂⁺、OH₂⁺、CO₂⁺、CH₃⁺、CH₄⁺などの比較的小さな分子イオンが1 MeV/u程度にまで加速されている。これらの分子イオンは薄膜を通過する際、分子から電子が剥ぎ取られ、静電斥力によって分子は個々の原子状イオンに分裂する。分裂後の個々のイオンの相対エネルギーと広がり角との解析から、分裂前の個々の原子の相対位置、即ち分子構造が決定されている⁹⁾。

カールスルーエ大学では、核融合における核燃料補給用として水素分子クラスタを加速するため、図-2に示すようなクラスタ源を高電圧部に搭載した1 MV静電加速器が開発されている¹⁰⁾。この装置によって、水素原子当たりの平均エネルギー7 eV、水素原子流に換算したビーム電流6 A、ビーム径約4 cmの水素クラスタイオンビームが得られている。生成された水素クラスタのサイズ分布及び電荷分布のために、加速後のクラスタイオンビームの速度分布は、図-3に示すようになりかなり広いものになっている¹¹⁾。生成クラスタイオンの構成原子数とイオン価数の比n/Zは平均1 × 10⁵であった。

ブルックヘブン研究所では、25から1300個のD₂O分子からなる重水クラスタイオンを生成し、重水を吸蔵したチタンターゲットにこのクラスタイオンを注入して衝撃を与え、熱核融合反応を起こすことが試みられた¹²⁾。その結果、D-D核融合反応によって



($r_s n^{1/3} + \delta$) はクラスタの有効半径を、 n はクラスタサイズを示す。 W_∞ はカリウムの仕事関数を表す (文献14).
 図-4 カリウムクラスタイオンの生成ポテンシャル

放出される約1 MeVの3重水素と約3 MeVの陽子が検出された。クラスタイオンの全加速エネルギーが325keVであるため、D原子が持つエネルギーは最大でも1.3keVであり、大部分のD原子のエネルギーは数百eVである。このエネルギーでは、D原子同士の単一衝突によってD-D核融合反応が起きる確率はほぼゼロである。従ってもし熱核融合反応が観測可能な確立で起きたなら、それはクラスタ衝撃におけるクラスタの多体効果は何らかの影響を及ぼしたことになる。これの是非についての議論は、現在尚続いている¹³⁾。

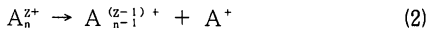
3.2 クラスタ加速の限界

質量Mのクラスタイオンを静電加速あるいは高周波加速する場合、加速のための力fはイオンの電荷Qに比例する。力fとそれによって得られる加速度aとの関係は運動方程式

$$f = Ma \propto Q \tag{1}$$

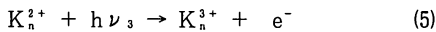
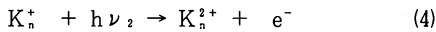
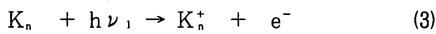
で与えられる。従って、得られる加速度は電荷と質量の比Q/Mに比例する。一方、n個の原子Aで構成されるクラスタイオンA_n^{z+}の価数Zを一定にしてクラスタサイズを小さくすると、クラスタ内部の静電的エネルギーはサイズに反比例して高くなる。nが臨界サイズn_c以下になると、A⁺イオンをクラスタから

ら解離させるためのエネルギーが不要（即ち解離エネルギーが負）となり、内部エネルギーを下げるために、



反応が自動的に進行する。従って、一定サイズのクラスターに付与できる電荷Qには制限があり、得られる加速度の大きさにも限界が生じる。

コットン研究所のC. Brechignacのグループは、光吸収によって電荷Zを持つカリウムクラスターイオンを生成するためのエネルギーをクラスターサイズの関数として測定し、カリウムクラスターイオンの臨界サイズを決定した¹⁰⁾。結果を図-4に示す。1⁺、2⁺、3⁺の表示はそれぞれ



のイオン化過程を示している。2価のクラスターイオンでは、臨界サイズ $n_c=16$ 以下の小さなクラスターイオンは不安定になって(2)の解離反応を起こすため、いくら高いエネルギーの光を吸収しても(4)の反応が起きないことを示している。同様にして3価のカリウムクラスターイオンの臨界サイズは $n_c=75$ である。4価及び5価の臨界サイズも以上の結果の類推から決まり、それぞれ $n_c(4+) = 235$, $n_c(5+) = 530$ である。臨界サイズの $^{40}K_{16}^{2+}$, $^{40}K_{75}^{3+}$, $^{40}K_{235}^{4+}$, $^{40}K_{530}^{5+}$ クラスターイオンについて Q/M を求めると、それぞれ $1/320$, $1/1000$, $1/2350$, $1/4240$ である。現在、 H^+ や He^+ の軽イオンを始め、 $^{238}U^{92+}$ に至る多くの重イオンが高エネルギーに加速されているが、そのほとんどのイオンで Q/M は数分の1から小さいものでも $1/10$ 程度である。それに対してクラスターイオンの Q/M は非常に小さく、大きな加速度が得られないために、クラスターイオンを高エネルギーに加速することが困難になっている。例えば上記4つのクラスターイオンを20MVの高電圧で加速しても（静電加速では最大級の加速器である）、得られる核子当たりのエネルギーはそれぞれ $62.5\text{keV}/u$, $20\text{keV}/u$, $8.5\text{keV}/u$, $4.7\text{keV}/u$ に過ぎない。従って、 $1\text{MeV}/u$ 以上の高エネルギークラスターを生成するためには、別の方法が要求される。

4. 高エネルギークラスター生成方式の提案

クラスターイオンの質量が電荷に対して大きいために十分な加速度をイオンに与えられないのであれば、予め個々に原子を高エネルギーにまで加速した後、ク

ラスタ化することは出来ないであろうか。原子単体であれば、 MeV/u のエネルギーはおろか GeV/u から更に高エネルギーへの加速がすでに行われており、基本的な加速技術に問題はない。問題は高エネルギーにあるイオンを如何にして凝集し、クラスタ化することにある。その過程を次に述べる。

4.1 イオンの冷却

通常イオンはイオン源の高温プラズマ中で生成され、そこから静電的に引き出されてイオンビームとなる。イオンビームと同じ速度の座標系に乗って個々のイオンの速度分布を見ると（以下この座標系で話を進める）、イオン源のプラズマ温度における速度分布をほぼそのままに保っている。クラスタ化するためには、この高温にあるイオン温度を下げるが必要であり、それがイオンビームの冷却である。

イオンビームの冷却にはレーザー冷却法を考える¹⁰⁾。この方法はイオン（原子）のように内部構造を持つものに有効な方法であり、スペクトル純度の非常に高い波長可変レーザーを用いる。レーザー周波数をイオンの強い共鳴遷移に合わせて、光子の吸収と放出の際、その反跳によってイオンの運動を変化させる。吸収により受ける反跳が全てレーザーの入射方向に作用するのに対して、放出により受ける反跳は等方的に作用する。従って光子の吸収、放出を何度も繰り返すと、吸収によって受けた反跳のみがイオンに作用する。熱運動によってレーザー入射と同じ方向に速度を持つイオンからは、ドップラー効果によってレーザー波長は長く見えるが、逆にレーザー入射と反対の方向に速度を持つイオンからは、レーザー波長は短く見える。レーザー周波数を低周波数から共鳴周波数に向けて変化させれば、レーザーの入射と反対の方向に速度を持つイオンのみが光子を吸収し、イオン速度と反対の方向に反跳を受けてイオンは冷却される。

マインツ大学のS. Schröderのグループは、マックスプランク研究所にあるテストストレージリングに蓄積された 13.3MeV の $^7\text{Li}^+$ イオンビームのレーザー冷却を行なった¹⁰⁾。 $^7\text{Li}^+$ イオンが 548.5nm に共鳴遷移を持つのに対し、彼らはイオンビームと同じ方向から 514.5nm の Ar^+ イオンレーザーを、また反対方向から波長可変の色素レーザーをそれぞれ入射し、冷却前に 260K の温度に相当する速度分布を持つイオンビームを、 200mK にまで冷却することに成功している。

4.2 イオンの中性化

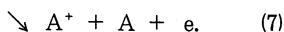
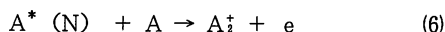
クラスタ化を妨げる要因は同じ電荷を持つイオン

間のクーロン斥力である。従って、正イオンでは電子を捕獲して中性原子にする必要がある。正イオンが電子を捕獲する条件は、イオンに対する電子の相対的な運動エネルギーが電子の結合エネルギーより小さい事である。従って、イオンと同じ速度でイオンと併走する電子が最も捕獲され易い。

4.3 中性原子間の相互作用

中性原子間では、クーロン力のようなイオン間距離 r に反比例する長距離ポテンシャル ($\propto -1/r$) の力は作用しないが、中性原子同士が近づくに従い、互いの電子雲に影響を及ぼして原子の分極が生じる。分極した原子間には分散力と呼ばれる力が作用する。分散力は原子間に化学結合が生じない場合には、重要な役割を果たす。例えばAr, Heなどの希ガスやN₂, O₂などの分子ガスが凝集して液体になるのは、分散力に拠るものである。分散力のうち、最も強く働くのが電気双極子間の相互作用である。最も安定な状態(基底状態)にある原子では、電気双極子間にロンドンファン・デル・ワールス力と呼ばれる引力が作用する。この力は $-1/r^6$ に比例するポテンシャルを持つため、非常に接近した原子間でのみ作用する。もし原子のどちらか一方が励起状態にあると、電気双極子間に働く力のポテンシャルは $-1/r^3$ に比例するため、ロンドンファン・デル・ワールス力に比べて、より遠くにある原子とも相互作用する。相互作用の大きさは分極率に比例するが、高励起状態にある原子ほど分極も大きいため、相互作用は強くなる。

高励起状態にある原子 $A^*(N)$ と基底状態にある原子 A の衝突を考える



N は励起状態を表す主量子数であり、基底状態は $N=0$ である。(6)の反応を会合性イオン化反応、(7)

をペニングイオン化反応と呼ぶ。原子の温度が低いときは(6)の反応が主流になる。 $A\ddagger$ の生成率は $A^*(N)$ 原子の密度 $\rho(N)$ に比例し、その比例係数 $k(N)$ は反応定数と呼ばれる

$$\frac{dA\ddagger}{dt} = \sum_{n=1}^{\infty} k(N) \rho(N). \quad (8)$$

オルセーの電子基礎研究所のJ.WeinerとJ.Boulmerはナトリウム原子の会合性イオン化反応の反応定数の測定を行った¹⁷⁾。結果を図-5に示す。主量子数が比較的小さいときの反応定数は主量子数とともに急激に大きくなり、高い励起状態ほど原子間相互作用が大きい事を示している。一方励起状態が高くなると、励起状態で存在する原子の寿命は短くなり、反応率としては小さくなる。従って、反応率が最も高くなる励起状態が存在する。

高速イオンのクラスター化の過程で、電子捕獲により中性化された直後の高励起状態にある原子は、上の議論から長距離に亙る大きな力で互いに引き合うことになる。高速原子間の相対的な運動エネルギーがクラスターの解離エネルギーより小さければ、互いに引き寄せられた原子は凝集し、クラスター化する事が期待できる。

4.4 高エネルギークラスター生成システム

以上3つの過程を用いた高エネルギークラスター生成システムを図-6に示す。イオン源において生成されたイオンビームを線型高周波加速器または静電加速器で必要なエネルギーに加速し、蓄積リングに入射する。蓄積リングでは空間的なイオン密度を高めるために、イオンビームの高輝度化を図る。リング内の残留ガスとの衝突頻度によって蓄積されているイオンの寿命が決まるため、高真空が要求される。1 MeV/uのイオンを1秒間閉じ込めるためには、 2×10^{-8} Paの真空

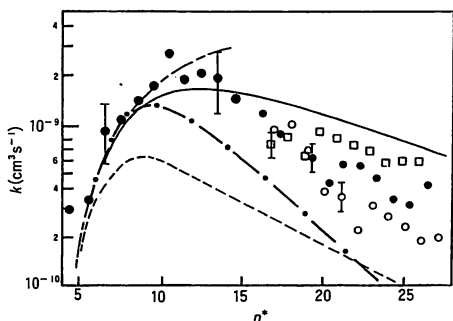


図-5 Na+Na*(N) → Na‡+e 反応における反応定数の主量子数N依存 (文献17)

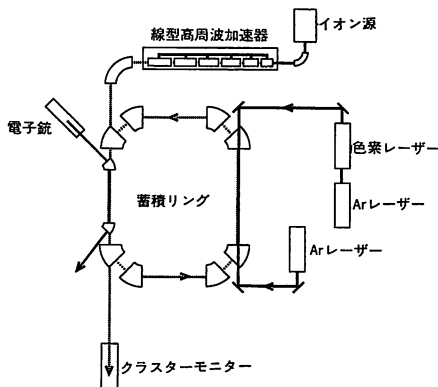


図-6 高エネルギークラスター生成の為の加速器系

度が必要である。その間のイオンの走行距離は 1.3×10^7 mである。クラスターの解離エネルギーよりイオンの温度が高い場合には、レーザー冷却を行う必要がある。イオンビームと同じ方向からと反対の方向から、2本のレーザービームを入射する。冷却されたイオンビームは、電子ビームと併走しながら電子捕獲により中性化される。高励起状態の原子密度が十分高ければ、高速原子は凝集して高エネルギークラスターとなる。

電子捕獲後の凝集反応の反応定数を 10^{-8} cm³/s程度と考えると、高励起原子の密度 10^{11} cm⁻³では0.1 ms毎に凝集反応が起きる。但し、0.1 msの時間に1 MeV/uの原子は約1 kmの距離を走行するため、非常に長いビームガイドが必要になる。

5. おわりに

高エネルギークラスタービームは、その特徴である高密度パワーと高速パルス性を活かし、多方面の分野における利用が想定される。慣性核融合において局部的に点火温度以上にするために必要な高密度パワーの打ち込みに、高エネルギークラスタービームの利用が考えられる。固体と同じ密度で飛来するクラスタービームは、ビームの集束性という面では電子、軽イオン、重イオンの各ビームより圧倒的に優れている。

材料分野では、イオン注入技術によって注入深度の制御された均一なドーピングが行われ、半導体分野で重要な技術になっている。イオンビームの代わりにクラスタービームを注入すると、不均一凝縮層が形成される。例えば磁性クラスターや化合物クラスターの局所的な注入など、新素材開発への利用が期待できる。

クラスタービームの多体効果の利用として、短時間の間に、局所的に複数のイオン照射が要求される場合が想定される。例えば生体におけるDNA 2本鎖を同時に切断する場合、一方が切断された後それが修復される前にもう片方も切断されることが必要であり、クラスタービームが威力を発揮する。またクラスタービームのように照射線量密度が高いことは、低い照射線量でも局部的に必要な一定線量が得られるため、生体、医療の分野においても高エネルギークラスタービームは重要な技術になると思われる。

こうした様々な利用が想定される中で、高エネルギークラスターの物質透過のような、素過程の研究が重要になる。クラスターが物質を通過する際、クラスターを構成する個々の原子はどのようにエネルギー損失をするのだろうか。原子1個が単独で物質を通過する際

の飛程と、クラスターになって通過する際の飛程とは異なるのだろうか。クラスタービームの物質透過の研究は始まったばかりであり、まだほとんど解明されていないのが現状であるが、クラスターの多体効果がエネルギー損失に影響していることが、計算機シミュレーションによる研究で明らかにされている¹⁶⁾。

謝辞 電子技術総合研究所エネルギー物性研究室長の谷本充司氏と同研究室の齋藤直昭氏には、クラスタービームについての活発な議論をして頂き、執筆に当たって多くの示唆を頂きました。ここで改めて両氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) W. D. Knight et al., Phys. Rev. Lett., Vol. 52, No.24 (1984), 2141-2143.
- 2) T. D. Klots et al., J. Chem. Phys., Vol. 92, No.3(1990), 2110-2111.
- 3) A. P. Alivisatos et al., J. Chem. Phys., Vol. 90, No.7 (1989), 3463-3468.
- 4) 本特集記事の大和田野, レーザーについてを参照.
- 5) D. S. Gemmell, Nucl. Instrum. Methods, Vol. 170, (1980), 41-56.
- 6) R. Laubert and F. K. Chen, Phys. Rev. Lett., Vol.40, No.3 (1978), 174-178.
- 7) M. J. Gaillard, J. C. Poizat and J. Remillieux, Phys. Rev. Lett., Vol.41, No.3 (1978), 159-162.
- 8) A. Faibis, G. Goldring and Z. Vager, Phys. Rev. Lett., Vol.39, No.11 (1977), 695-697.
- 9) D. S. Gemmell et al., Nucl. Instrum. Methods, Vol.170, (1980), 79-80. D. S. Gemmell et al., Nucl. Instrum. Methods, Vol.170, (1980), 81-85.
- 10) E. W. Becker et al., Nucl. Eng. Design, Vol.73, (1982), 187-.
- 11) H. O. Moser and B. Krevet, J. Appl. Phys., Vol.58, No.2 (1985), 642-.
- 12) R. J. Beuhler et al., Phys. Rev. Lett., Vol.63, No.12 (1989), 1292-.
- 13) M. Fallavier et al., Phys. Rev. Lett., Vol.65, No.5 (1990), 621-624. P. M. Echenique et al., Phys. Rev. Lett., Vol.64, (1990), 1413-. R. Timmermann and R. Plaga, Phys. Rev. A, Vol.44, No.7 (1991), 4412-4417. Y. E. Kim et al., Modern Phys. Lett. B, Vol.5, No.6 (1991), 427-438. S. Valkealahti et al., Z. Phys. D, Vol.22, (1992), 547-551.
- 14) C. Brechignac et al., Phys. Rev. Lett., Vol.63, No.13 (1989), 1368-1371. See also C. Brechignac et al., Phys. Rev. Lett., Vol.64, No.24 (1990), 2893-2896.
- 15) 清水富士夫, 応用物理, 60巻, 9号 (1991), 864-873.
- 16) S. Schröder et al., Phys. Rev. Lett., Vol.24, No.24 (1990), 2901-2904.
- 17) J. Weiner and J. Boulmer, J. Phys. B, Vol.19, 599 (1986).
- 18) N. R. Arista and A. Gras-Marti, J. Phys. : Condens. Matter, Vol.3 (1991), 7931-7943. M. Vicanek et al., Phys. Rev. A, (1992) 掲載予定.