

高速イオン衝突による微小液滴からの 二次イオン質量分析手法の開発

(京大院工¹・京大工²)

○間嶋拓也¹, 北島謙生¹, 大西佳樹¹, 上田紘己², 土田秀次¹, 伊藤秋男¹

Development of secondary ion mass spectrometry of microdroplets by fast ion collisions

(Kyoto University)

○T. Majima, K. Kitajima, Y. Oonishi, H. Ueda, H. Tsuchida, and A. Itoh

【序】 MeV エネルギーの高速イオンが液体中で誘起する衝突反応過程は、生体内における放射線相互作用の初期過程を理解するための基礎として極めて重要である。これまで、液体標的に対する実験研究は大気圧下での照射実験に限られていたため、測定手法も大気圧下で可能な分光測定や化学的分析などに限定されていた。本研究では、複雑な反応生成物の系統的な分析や反応ダイナミクス の 解明を目的に、真空内に導入した微小液滴への MeV イオンビームの照射が可能新たな実験システムの開発した。その最初の実験として、衝突によって放出される正負二次イオンの飛行時間 (TOF) 測定法による質量分析を行った。微小液滴を用いることにより高真空環境を保ったまま、液体標的を真空内で扱うことが可能となる[1]。放出される二次イオンの情報からは、衝突領域近傍で初期に生成される分子種の情報が捕らえられるものと期待できる。我々のグループでは、既に液体分子線からの二次イオン質量分析に成功しているが[2]、それと比較すると、測定領域の真空度が大幅に改善されるという技術的な利点と、より小さなサイズへの展開によって有限サイズ効果から新たな知見が得られる可能性があるという点に特徴があると考えている。本発表では、水およびエタノール液滴に対する最初の測定結果を報告する。

【実験方法】 実験は、京都大学工学研究科附属量子理工学教育研究センターの 2MV タンデム型ペレトロン加速器を用いて行った。大気圧中で生成した微小液滴を液滴分子線として真空槽内に導入し、加速器から引き出した 0.75 ~ 2 MeV の H⁺および C²⁺イオンビームと交差させた。衝突領域の真空度は、多段の差動排気により、10⁻⁴ - 10⁻³ Pa 程度に保たれている。

まず、衝突領域に導入されている微小液滴のサイズ分布を評価するため、衝突によって前方散乱したイオンを半導体検出器で測定

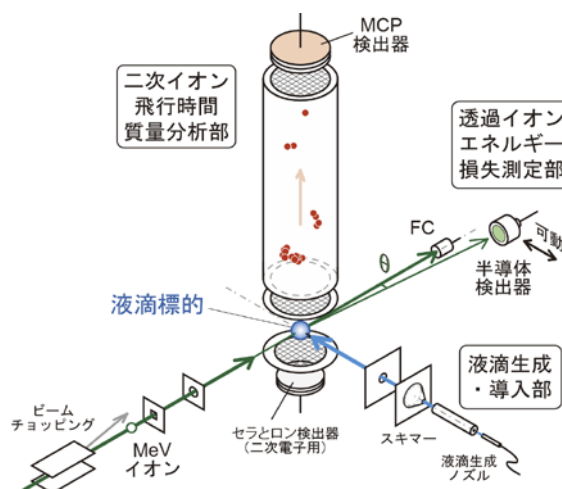


図 1. 実験セットアップ概略図

した。散乱角は約 20~50 mrad の範囲でスキャンした。散乱イオンのエネルギー分布から、液滴透過に伴うエネルギー損失分布が得られ、その解析からサイズ分布を求めることができる。

衝突によって生成された二次イオンは、静電場で鉛直方向に引き出し、TOF 測定法によって質量分析を行った。負イオン測定においては、入射イオンビームを静電ディフレクタでパルス化し、パルス化と同期した信号を TOF 測定のトリガー信号として用いた（チョッピングスタート法）。正イオンの測定においては、それに加え、衝突によって放出される二次電子を検出し、それをトリガー信号として用いる測定を行った（電子スタート法）。これらの比較から液滴からの放出二次イオンの分析を行った。

【結果と考察】 前方散乱イオンのエネルギー分布は、エネルギー損失の無視できる鋭いピークと、例えば 2MeV H^+ 入射においてエネルギー損失の量が数十~数百 keV 程度の幅をもつような、幅広のピークで構成されることが分かった。前者は、蒸発した気相分子との散乱によるものであり、後者が液滴透過によるエネルギー損失分布を示していると考えられる。この分布から液滴サイズ分布を導入するため、Geant4 コード[3]を用いたモンテカルロ計算を行った。その結果、直径 $\sim 1\mu m$ を中心としたサイズ分布を持つことが分かった。高速イオンは、元来、薄膜の分析を得意としており、微小液滴のサイズ測定にも効果的であるといえる。

次に、TOF 測定の例として、エタノール液滴標的に対する負の二次イオン質量スペクトルを図 2 に示す。エタノールの解離負イオンに加え、プロトン脱離したエタノール負イオンを核としたクラスターイオンが検出された。負イオンやクラスターイオンが蒸発した気相分子から生成されることは考えにくいから、これらは明らかに、液滴からの二次イオンが測定できていることを示している。また、正イオンの測定においては、気相分子からの信号が強く、液滴由来の成分が埋もれてしまう問題があることが分かった。ここで電子スタート法を用いると、気相分子と衝突した場合に比べ液滴衝突で放出される二次電子数が多いから、液滴衝突イベントの寄与を相対的に高めることができ、クラスターイオンなどの液滴からの寄与を強調して引き出すことができることが分かった。

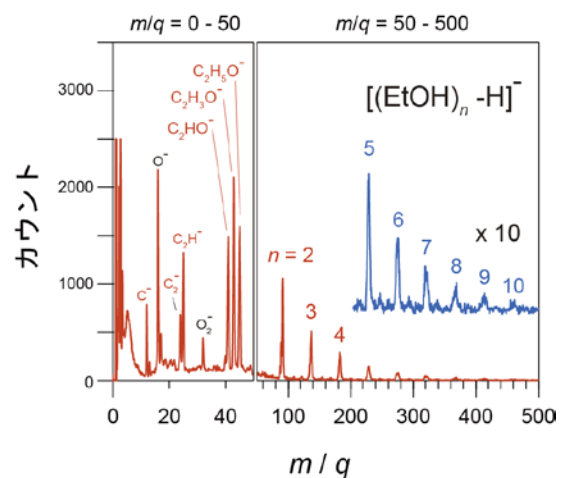


図 2. 2 MeV C^{2+} 入射におけるエタノール液滴からの負の二次イオン質量スペクトル

[謝辞] 液滴導入システムの開発にあたって、学習院大学の河野淳也准教授から多くのご指導をいただきました。ここに感謝申し上げます。

[1] J. Kohno et al., Chem. Phys. Lett., 420, 146 (2006).

[2] M. Kaneda et al. J. Chem. Phys., 132, 144502 (2010).

[3] GEANT4, <http://geant4.cern.ch/>