重イオン - 原子衝突における内殻電離とその応用

俵 博 之

九州大学工学部エネルギー変換工学教室 福岡市東区箱崎町 6-10-1 〒 812

(1977年4月27日受理)

Innershell Ionization in Heavy Ion-Atom Collisions and Its Applications

H. TAWARA

Nuclear Engineering Department, Kyushu University, Fukuoka 812, JAPAN

(Received April 27, 1977)

電子あるいは光子衝突による内殻電離の研究の歴史は古く、その結果は多くの方面で応用されている。一方、イオン特に放射性原子核から放出される α 線による研究も Chadwick の時代までさかのぼり、また水銀イオンを用いた実験も 1933 年に発表されている。しかし重イオンによる内殻電離現象の系統的研究はここ数年本格的になってきたばかりで現在急速に進んでおり多くの興味ある話題を提供している。ここでは重イオンによる内殻電離の特長や新しい現象およびそれらの応用について興味ある点を 2~3 のべてみたい。

1. は じ め に

ここで言う重イオンとは、H, He, Li などのごく軽いイオン¹⁻²⁾をのぞいたものすべてにわたり、そのエネルギーは数 keV から数 MeV さらに数 10 GeV にまで広がっている。

重イオンを加速する技術的な面は原子核物理と深い関連がある。1930年代に次々と新しい粒子加速原理が出され、主な興味はいかにして高エネルギーに達するかという方向へ進んでいった。この初期の段階で最も興味あるのは、最初の重イオン線形加速器で行なわれた最初の物理実験が核物理でなく、ここでのべようとする重イオン衝突での内殻電離によるX線発生に関する研究であったことである³⁾。勿論当時えられた最高エネルギーが 2.5 MeV の水銀イオンでは核反応は起らないので、この研究は当然だったともいえる。一方、1938年に Hahn-Strassman によって発見された核分裂で生じる重イオ

ンもひとつの重イオン源として 2~3 実験が行なわれたが、異なった重イオンが含まれ、かつ、イオンのエネルギーが広がっていること、その強度がよいことなどのため、原子衝突の研究にはあまり適当でない。

H, He などの軽いイオンと重イオン衝突における大きな差違は、前者が無構造であり点電荷として作用するのに対し、後者はイオン特有の構造を有しその構造が衝突過程に大きな影響をおよぼしている点であろう。勿論、相対論的エネルギー領域ではイオンの構造による差違はだんだん失なわれて行く傾向にある。

重イオン衝突実験で重要なパラメーターのひとつに衝突時のイオンの電荷状態、励起状態がある。イオンの電荷は主として外殻電子の振舞に関係し、イオンの速度がきまるとターゲット物質中でのイオンの平均電荷を経験的に知ることが出来る⁴⁾。イオンの電子損失、捕かく現象に関しては古くから調べられているが⁵⁾、いまだ理論、実験とも充分でない。イオンの平均電荷は電子損失および捕かく断面積の関係によってきまることが、大ざっぱに言ってイオン速度が大きくなるとまわりの電子はイオンから振り落され、イオンの電荷は高くなり、最終的には電子をもたない原子核だけの完全電離状態になる。たとえば、エネルギー 250 keV で水素は完全電離(プロトン)になるが、 $_{36}\text{Kr}$ では 550 MeV でも平均電荷 31+で、まだ核のまわりに数個の電子が存在する。さらに U^{92+} イオンをつくるには 100 GeV という加速エネルギーが必要と予想される。重イオン衝突によって生じる外殻電子の電離現象にも興味あるデータが報告されている

(文献34参照)が、ここでは最近になって多くの興味ある事実が観測され、また予想されている重イオンと重い原子の衝突による内殻電子の振舞に関する研究を中心に話を進めよう⁶⁻⁸⁾。

衝突によって内殻軌道に空席が生じると、X線を出す放射過程とオージェ電子を出す非放射過程が競合する。これらは対象とするイオンの原子番号 (Z) に強く依存し、 Z が大きくなるにつれX線を放出する過程が支配的になる。従って内殻空席の発生状況などをしらべるにはX線あるいはオージェ電子のエネルギーおよび強度を測定すればよい。あるいは全く異なった方法すなわち入射イオンのエネルギー損失の測定からも内殻電離の様子をさぐる事が可能であるが、比較的低エネルギー (数100 keV 以下) でのみ有効である。重イオン衝突では前述のようにイオンの電荷、励起状態が重要なため、多くの場合ターゲットがガス状か固体かによって著しい差があらわれる (固体効果)。より基本的な衝突機構を調べるにはガス原子との単一衝突による実験が重要である。一方固体ターゲットを用いると衝突間の時間が短かく連続的な衝突とみられるようになり実際の衝突時のイオンの電荷、励起状態は入射時のそれとは全く違ってしまったり、または反跳原子との衝突が重要になったりして複雑な過程であるが一面予想しない興味ある話題を提供してくれる。

内殻電離現象を調べる際には注目している内殻軌道電子の軌道速度 v_e と入射イオンの速度 v_i の比が重要となる。 $v_i/v_e \ll 1$, ≤ 1 , $\gg 1$ の3つの場合かなり異なった振舞をするのでそれぞれに分けて話を進める。

2. 内殻電離機構

2.1 $v_i/v_e \ll 1$

重イオンの構造が衝突現象に対して大きな影響をもつのは、入射イオン速度が比較的小さい時である。この領域での重イオンの振舞はH, Heなどの軽イオンにくらべ著しい差違がみられる。重イオン (z_1) と重いターゲット原子 (z_2) がゆっくり接近して行く時、両者の最接近距離 r_0 が内殻軌道半径より小さくなると軌道電子は (z_1+z_2) の原子核の周囲を運動し、電子からみれば (z_1+z_2) の準原子が存在しているかのように見える。この考えから予想される特長として、 r_0 が内殻電子軌道半径以下すなわち衝突エネルギーがあるしきい値をこえると電離確率は0から急に大きくなり、また電離断面積が急激に増大しその後ただちに飽和性を示し、それらの値は同じ速度のHイオンにくらべ数桁大きいことが、実験的にも確認されている⁹⁾。重イオン衝突における準原子形成の考え

Fig. 1. Energy diagram for Z_1+Z_2 collisions ($Z_1>Z_2$).

は1965年 Fano-Lichten¹⁰⁾ によって提案され、多くの観測事実を少なくとも定性的にうまく説明出来る。このモデル自身はすでに古くから Hund Mulliken によって提出されており、 H^+-H 系の衝突現象を H_2^+ イオンの分子的性質にもとづいて説明したことにはじまる。このモデルで重要な点は衝突の際形成された融合準原子 (UA) における電子軌道の主量子数が各々の衝突前の分離原子 (SA) のそれより大きくなりうるという電子の昇位現象 promotion であろう。Fig. 1 に重イオン z_1 と重い原子 z_2 ($z_1>z_2$) 衝突におけるエネルギー関連図を示す。この図からもわかるように、SA と UA の各レベルはある関係で結ばれ、各軌道電子はそれらを結ぶ分子軌道 (MO) に沿って運動する¹¹⁾。今、KおよびL殻の電子だけに注目してみると次の点が容易に推測されよう：1. 重い原子 z_1 の K 殻電子は他の軌道との交さがないので昇位せず電離は起らない、2. 軽い原子 z_2 の K 殻電子は分子軸回転による $2p\sigma-2p\pi$ 間の回転結合 rotational coupling により昇位可能である。この際重い原子の 2p 殻に空席が存在しなければ昇位すなわちK殻電離はおこらない、3. 重い原子の L 殻電子は $3d\sigma-3d\delta$ MO の結合で昇位可能であるが比較的重い原子イオン衝突の時のみ有効である、4. 軽い原子の L 殻電子は主として $4f\sigma$ MO を経て多数の外殻 MO と交さするために大きな電離断面積を有する。

原則的にこの推測は正しい。実験が進むにつれて多くの新しい事実が観測されている。2~3 の例として、 $1s\sigma-2p\sigma$ MO の交さがなくとも遠距離での相互作用にもとづく $1s\sigma-2p\sigma$ MO 間の動径方向結合 radial coupling によって重い原子のK殻電子も電離される (vacancy sharing); z_1 と z_2 の結合エネルギーが K, L, M, ... 殻間で一致すると断面積は急増する (level matching); 固体

ターゲット中では軌道電子損失による入射イオンでの電子の結合エネルギーが増加するため、イオンとターゲット原子のエネルギー準位の入れかわりが起り、重い原子のK, L殻電子の電離が観測される (level swapping); 内殻および外殻電離が同時に起り、蛍光比が増大する、などがある。

上述のように、もし重い原子の 2p 殻に空席がなければイオンおよびターゲットともにK殻電離は起らない。衝突原子の一方の z が 10 以下ならば必ず 2p 殻に空席があるが $z > 10$ では通常 2p 空席は存在しない。従って $z=10$ (Ne) は興味がある。Ne⁰ では 2p 空席はないが Ne⁺, Ne²⁺, Ne³⁺, ... と電荷があるにつれ、2p 空席数は 1, 2, 3, ... と増加して行くので Ne の K 殻電離断面積もほぼこの割合で増加することが確認されている¹²⁾。

電子昇位にもとづくK殻電離の理論的検討も進められ、Briggs-Macek (対称衝突)¹³⁾, Taulbjerg ら, Piancetti-Salin (非対称衝突)¹⁴⁾ が導き出したスケーリング則は非常に有用である。

上述のモデルでは、 $z > 10$ の原子では 2p 殻に空席が存在しないので K 殻電離は起らないはずであるが、実際には多くの衝突で K X 線が観測されている。従って $z > 10$ の重イオン衝突での K 殻電離には 2p π -2p σ MO 間の結合はあまり有効でなくむしろ次の 3 つの過程が作用していると考えられる¹⁵⁾：

1. (3d σ -2p π)-(2p π -2p σ) MO の 2 段階で昇位する過程
2. 2p σ MO または 2p (UA) からの連続状態あるいは高い空席への直接電離、励起過程
3. 1s σ MO または 1s (UA) からの直接電離、励起過程

これらの過程を Fig. 2 に模式的に示す。2 および 3 の過程は準原子形成による内殻電子の結合エネルギーの変化と点電荷のクーロン作用にもとづく直接電離励起過程を組合わせたものであり、数多くの観測データをうまく説明出来ているように思われるが理論的裏付けは十分でない¹⁶⁾。

2.2 $v_i/v_e \leq 1$

入射イオンのエネルギーが高くなるにつれイオンのまわりの電子数は減少して行く。このようなエネルギー領域では入射イオンの構造の影響がさらに大きくなる。中でも入射イオンのK殻電子の有無は著しい差をもたらす。Fig. 3 に 80 MeV Arⁿ⁺ ($n=4-17$)-Ne 衝突系での K X 線量の n 依存性を示す¹⁷⁾。図からわかるように $n \leq 15$ では X 線強度は n の増加につれて徐々に増大し

Fig. 2. K-shell ionization mechanisms for $Z > 10$ atoms.

Fig. 3. Charge dependence of K-X-ray yields in 80 MeV Arⁿ⁺+Ne collisions.

ているが $n \approx 17$ に達すると急激に増大している。一般的な傾向として入射イオンが重くなるにつれ、このイオン電荷依存性は大きくなる。同じような現象はオージェ電子収量についても全く似ており、この増加の原因として次のような点が考えられる： 1. 原子核のまわりの電子数減少による遮へいの減少 (有効核の増大), 2. 多重電離による蛍光比の増加, 3. 電子捕かく (後述) などによる全電離断面積自体の増大, など。現在まで充分な実験的理論的検討は行なわれていない。

このような衝突で生成される X 線およびオージェ電子スペクトルを高分解能で測定すると入射イオンの電荷状態によってスペクトルは著しく変化することがわかる

(3章参照). これらの高分解能スペクトルからえられた蛍光比はイオン電荷と共に増大している. さらにX線スペクトルから完全電離に近い重イオンとの衝突ではターゲット原子自身もかなり完全電離状態になっていることが推測される. 従って重イオン衝突でのターゲット原子の電荷分布をしらべることはX線, オージェ電子測定とともに重イオン実験の重要なポイントと思われるがこの種のデータはまだない.

2.3 $v_i/v_e \gg 1$

このような高いエネルギー領域での原子衝突実験は全くないといってよい. 唯一の例は 3 GeV 炭素イオンによるK殻電離断面積の測定であろう¹⁸⁾. このエネルギー領域では重イオンのまわりの電子はほとんど失われ, イオン自身は無構造になり重イオンは点電荷として作用し, クーロン相互作用が支配的になると予想される. しかしこれらに対応するイオンエネルギーは Kr^{36+} をうるのに 2 GeV, Xe^{54+} では 10 GeV になり, いまだ人工的に加速した例はない. このように高いエネルギーをうるには大形シンクロトロンなどの大形加速器が必要であり, 加速技術そのものが開発段階にある.

3. 重イオン衝突で生じるX線およびオージェ電子スペクトル

すでにのべたように, 比較的小さい重イオンは特有の構造をもっているため衝突で生じるX線およびオージェ電子のスペクトルにも, 電子や陽子などの点電荷粒子によるそれとはかなりの差があると予想される. その端緒となったのは Richard らによる 15 MeV O^{4+} イオン衝突における Cu, Ni の $K\alpha$, $K\beta$ X線のエネルギーが Si(Li) 検出器で測定してもプロトンのそれとはきりぎりしているという発見であろう¹⁹⁾. その後高分解能の結晶スペクトロメータによるX線スペクトルの測定へと移るにつれ, 重イオンとプロトンとの差がさらに明確になってきた. すなわちX線スペクトルでは diagram 線にくらべて satellite 線の強度が著しく強くなり, また hypersatellite 線もかなり強いこと, オージェ電子スペクトルではあまりに多数の遷移がおこるため, 0.01% 程度の分解能でも十分分離出来ずしばしばバンド状になる. これらの特長は昇位モデル (2.1 参照) から期待されるように1回の衝突で多数個の電子移動すなはち多重電離が起りやすいことから説明出来る. 重イオン衝突におけるこのような satellite 線の発生機構に関する理論的実験的解明はまだ不十分であるが各々の電子の電離が全く独立事象として統計的に起こっているとすると²⁰⁾, 多重電離 (k 個のK殻電子および l 個のL殻電子が同時に

電離された状態を $K^k L^l$ と表わす) が起る断面積は次の式で表わされる:

$$\sigma_{K^k L^l} = \int_0^\infty \left(\frac{2}{k}\right) P_K^k(b) [1 - P_K(b)]^{2-k} \times \left(\frac{8}{l}\right) P_L^l(b) [1 - P_L(b)]^{8-l} 2\pi b db \quad (1)$$

ここで P_K , $P_L(b)$ は衝突係数 b の時のK殻およびL殻電子の電離確率である. 近似的に $P_K(b) \neq 0$ では $P_L(b) = \text{一定}$ と考えられる ($\equiv P_L$) ので上式は次のようになる:

$$\sigma_{K^k L^l} = \left(\frac{8}{l}\right) P_L^l (1 - P_L)^{8-l} \times \int_0^\infty \left(\frac{2}{k}\right) P_K^k(b) [1 - P_K(b)]^{2-k} 2\pi b db \quad (2)$$

$$\equiv \left(\frac{8}{l}\right) P_L^l (1 - P_L)^{8-l} \cdot \sigma_K \quad (3)$$

ここで σ_K はK殻電離全断面積を表わす. この式からわかるように重イオン衝突における satellite 線の強度分布はL殻電離確率 P_L を用いて2項分布で表わすことが出来る.

このようにして生じたスペクトルの系統的研究は少ないが観測された特長などを列記してみる.

3.1 ターゲット原子からのスペクトル

3.1.1 入射イオンによる差違

代表的な例としてX線, 陽子, ヘリウム, リチウム, 炭素, 酸素イオン衝突による $\text{TiK}\alpha$ X線のスペクトルを Fig. 4 に示す²¹⁾. X線, 陽子による satellite 線は diagram 線の強度にくらべ非常に小さい. 一方炭素, 酸素イオンでは逆に satellite 線のはるかに強く出てくる. さらに注意深くスペクトルを見ると重イオンによる satellite 線のエネルギーは陽子のそれにくらべやや高い方へずれておりかつ幅がひろくなっている. このことはK, L殻の他M殻電子も同時に電離されていることを表わしている. 大体の傾向としてイオンが重くなるほど外殻電子をともなる同時多重電離が著しくなり, X線スペクトルは高エネルギー側にずれ, 幅がひろくなる.

同様にオージェ電子スペクトルにも重イオンと陽子とでは著しい差があり, 重イオンによるスペクトルは多重電離のため電子のエネルギーは小さくなり, 多数のピークが現われ, 各々のピークは分離出来ない場合が多い²²⁾ (Fig. 5).

3.1.2 入射イオンのエネルギー依存性

Fig. 6 に Ne イオンのエネルギーの関数として $\text{AlK}\alpha$ X線のスペクトルを示す. 1.5~15 MeV のエネルギー傾

Fig. 4. Ti- K_{α} X-ray spectra in X-ray, proton He, Li, C and O ion impact. The arrows show the energy for KL^n ($n=0\sim5$) satellites without additional M-shell ionization. Note the shift of the observed peaks from the calculated peaks.

Fig. 5. Auger electron spectra of Ne in proton, O^{5+} and Cl^{12+} ion impact.

域ではイオンエネルギーとともに高次 satellite 線の強度がよくなっている²³⁾。(3)式に示した様にX線の分布は P_L をパラメータとして表わすことが出来、 P_L が大きいほど高次の satellite 線が強いことを示す。実験でえられたスペクトルにフィットするようにきめた P_L を入射イオンのエネルギーの関数としてみると、入射イオンの速度とターゲット原子のL殻電子の軌道速度と同じ付近で P_L は最大になり、その前後では小さい値

Fig. 6. Al- K_{α} X-ray spectra in Ne ion impact as a function of the incident energy.

Fig. 7. Ne- K_{α} X-ray spectra in 35 MeV O^{n+} ion impact.

になる。特に非常に高エネルギーになると重イオンでも陽子などに似たスペクトルとなり、 P_L は非常に小さくなり重イオンが点電荷として作用するようになることを示している²⁴⁾。

3.1.3 入射イオンの電荷依存性

入射重イオンの電荷状態すなわちイオンの構造によってスペクトルが著しく変化する。入射イオンの電荷依存性を調べるにはガスターゲットを用いて単一衝突の条件で測定する。 O^{n+} イオン ($n=6, 7, 8$) を Ne に衝突させた時の Ne の K_{α} X線スペクトルを Fig. 7 に示す²⁵⁾。入射イオンが丸裸 (O^{8+}) になると他の状態にくらべ、スペクトルは著しい変化を示し、(3)式で示したような P_L をパラメーターとしてフィット出来なくなり、別の電離

Fig. 8. Si- K_{α} X-ray spectra from gas and solid targets in 45 MeV Cl ion impact.

機構が作用していると考えられる。いずれにせよ、入射イオンが高電離状態になるにつれターゲット原子の多重電離ははげしくなり、ほとんどのL殻電子も電離され裸に近いターゲットイオンが形成されていることがわかる。

3・1・4 ターゲット状態（ガス-固体）の依存性

固体ターゲットでは連続衝突により多重電離励起がおこり、入射時のイオンの電荷状態は失われ、ある種の平衡電荷状態になっている。従って1回目の衝突で生じた内殻空席をもったまま2回目の衝突をおこす可能性もある。1個のターゲット原子が孤立状態にあるがターゲットと異なり、固体ターゲットでは近傍に存在している他の原子の電子、valence 電子あるいは自由電子などのため、衝突で生じた多重電離をとまらぬ内殻空席がX線あるいはオージェ電子を放出する以前に、崩壊してしまうことがある。従ってガスと固体での有効蛍光比（各satellite 線に対応する）はかなり異なっている。Fig. 8に45 MeV Cl イオンによるSiH₄（ガス）およびSi（固体）からのX線スペクトルを示す²⁶⁾。ガスターゲットでは高次のsatellite 線が強く、かつエネルギーシフトからもわかるようにほとんどのM殻電子も同時に電離されている。一方固体ターゲットでは見かけ上多重電離特に高次の電離確率が小さくなり、平均のX線エネルギーもかなりひくい。これは固体SiではM殻電子はvalence 電子であり、衝突で生じた多重電離をとまらぬ内殻空席にこれらの電子が捕かきされたことによると考えられる。事実plasmonの寿命（主として外殻電子が寄与する）が 10^{-17} secにくらべ、内殻空席寿命は 10^{-15} secであることから上述のことが理解出来る。

3・1・5 ターゲット化合物の依存性

光子、電子衝突でもX線スペクトルに化合物の影響が

Fig. 9. S- K_{α} X-ray spectra from several compounds in 32 MeV O ion impact.

Fig. 10. P_L -dependence on electron density of chemical compounds in 40 MeV Ne ion impact.

現われることはよく知られている。重イオンではつよいsatellite 線が生じるために、化合物によるスペクトルの差はより明確になる。Fig. 9にいろいろな化合物からのS K_{α} 線のスペクトルを示す。この場合valence 電子の密度が小さいほど強いsatellite 線の位置は高エネルギー側にずれており、3・1・4でのべた固体とガスターゲットとの差と同じ傾向を示す。(3)式に示したスペクトル分布を表わす P_L をvalence 電子密度の関数としてFig. 10に示す²⁷⁾。

同じように、伝導電子密度が異なる298°Kと77°K

Fig. 11. F- K_{α} X-ray satellite and hypersatellite spectra from compounds in 30 MeV O ion impact.

での Si からのスペクトルをくらべると、前者の最もよいピークは後者の場合より低エネルギー側にくる。すなわち結晶原子間の相互作用が化合物からの X 線スペクトルに大きな影響をもち、多重電離をともなう内殻空席の崩壊に重要な役割をはたしている。

3・1・6 hypersatellite 線

電子や光子衝突では二重 K 殻電離がおこる確率は非常に小さく（中重原子では単一 K 殻電離にくらべ 10^{-4} 倍程度）、測定は非常に少ない。一方上述のように重イオン衝突では satellite 線が強くあらわれるので当然ながら二重電離による hypersatellite 線もかなり強くなると予想される。これまで測定された例では重イオン衝突における hypersatellite 線の強度はプロトン、電子のそれにくらべ数 10 倍大きい。まだ系統的な実験は少ないが、興味あるのは satellite X 線スペクトルには著しい化合物の影響がみられるのに、hypersatellite X 線スペクトルにはその影響が非常に弱いことである (Fig. 11)²⁸⁾。これは hypersatellite をつくるような激しい衝突では一時的または永久的に化学結合が切れ、X 線を放出する際には各々の分離した原子になっているためと考えられる。

hypersatellite 線が入射イオンのエネルギー、あるいは重イオンの種類、ターゲット状態に如何に依存するかはまだよく調べられていない。しかし hypersatellite 線を出す K 殻二重電離空席の崩壊形成は通常の一重電離空席にくらべ非常に複雑で次のような過程が考えられる：

a. 二段階過程（時間的にずれて 2 つの K 殻空席が崩

壊する）

1. 2 個の X 線放出： K^2 -hypersatellite X 線 $\rightarrow$ KL satellite X 線
2. X 線放出後、オージェ電子放出： K^2 hypersatellite X 線 $\rightarrow$ KL satellite オージェ電子
3. オージェ電子放出後、X 線放出： K^2 hypersatellite オージェ電子 $\rightarrow$ KL^2 satellite X 線
4. 2 個のオージェ電子放出： K^2 hypersatellite オージェ電子 $\rightarrow$ KL^2 satellite オージェ電子

これからわかるように二重空席崩壊において hypersatellites X 線は 1, 2 過程、hypersatellite オージェ電子は 3, 4 過程で観測される。このような崩壊過程を理解するには X 線-X 線、X 線-オージェ電子、オージェ電子-オージェ電子間の時間的・空間的相関関係を調べる必要があろう。

b. 1 段階過程（同時に 2 つの K 殻空席が崩壊する）

1. X 線の同時放出：1 個の X 線として観測されるので通常の K X 線のエネルギーのほぼ 2 倍のエネルギーを有する。
2. X 線とオージェ電子の同時放出
3. オージェ電子の同時放出：1 個の電子として観測されるのでほぼ 2 倍のエネルギーを有する。

b・1 過程のみはごく最近実験理論両面からかなり検討がなされている²⁹⁾。他についてはまだ報告がない。b・1 に対応する 1 X 線放出の強度は通常の diagram 線強度にくらべ $10^{-4} \sim 10^{-6}$ で、 z が大きくなると空席寿命は短くなるので、その強度も急激に減少する。

hypersatellite 線に関してはそのエネルギーの決定、強度比の z 依存性、蛍光比、2 重空席寿命の測定などまだ未解決の分野が多い³⁰⁾。

3・2 入射イオンからのスペクトル

物質中を通過する入射イオンの電離励起状態はイオンエネルギー、ターゲット状態によって変化するので、イオン自身から放出される X 線、オージェ電子スペクトルもいろいろ変化することが予想される。たとえばイオンの入射エネルギーが高くなるとターゲット中でのイオンの平均的電荷はたかくなり、Li, Be 様イオン、さらに H, He 様イオンがふえてくる。30 MeV N イオンをうすいフォイルを通過させると N^{6+} イオンからのライマン線が現われる。

またターゲット状態によって X 線スペクトルが著しく変わる例を Fig. 12 に示す。a) は 80 keV の低エネルギー Ne^{+} イオンと Ne ガスターゲット系からの X 線スペクトルで、イオンおよびターゲットからの寄与があり、両者はほぼ同じスペクトルをしており、3・1 でのべたス

Fig. 12. Ne- K_{α} X-ray spectra from gas and solid targets in 80 keV Ne ion impact.

ベクトルと同様に2項分布で各ピークの強度をフィット出来る。b)は Ne^+ イオンを厚い固体にうちこんだ時観測される Ne^+ イオンからのスペクトルで、この際固体中に Ne^+ イオンが蓄積されないように注意している。ピークはなくなり非常に幅ひろいバンド状スペクトルになっている。これはX線放出時に入射イオンがいろいろな電離、励起状態にあるためそれぞれのピークがずれ、分離出来なくなったことも原因のひとつと考えられるがまだ充分解明されていない。しかし固体中でのスペクトルで強いピークがガスターゲットのそれにくらべかなり低い方へずれているのは3・1・4にのべた効果と全く同じ理由による。さらに固体ターゲット中に Ne^+ イオンを充分うちこんでNeイオン-Neターゲットの衝突を行なわせると入射 Ne^+ イオンおよびNeターゲット両者からの寄与があるはずであるが観測されたスペクトルはc)のように単にa)+b)では表わせない。入射イオンから出るスペクトルはb)と同じであるとしてc)からb)をさしひいた部分はターゲット原子からのスペクトルに対応すると考えてよい(d)。これはa)とは著しく異なりかつ2項分布で表わせない点が注目される³¹⁾。

また、高エネルギーをもつ重イオンでも同様ないわゆる固体効果がみられる。Fig. 13に30 MeV $\text{F}^{6+,7+}$ イオンからのX線スペクトルを示す。ガスターゲットでは強い 2^3P あるいは 2^4P 状態からのピークが厚い固体ターゲットでは完全に消滅している。すなわち固体中ではある種の状態特に準安定状態のイオンは衝突によって消滅(collisional quenching)してしまう。このことはX線を出す確率すなわち蛍光比がガスと固体では著しく異なる

Fig. 13. F-K X-ray spectra from two- and three-electron F atoms accelerated to 30 MeV in gas and solid targets.

ことを意味し、ガスに対してはいわゆる通常の“static”な蛍光比を用いられるが固体に対しては上述の消滅を考慮した“dynamic”な蛍光比を用いなければならない。特に今のべたFイオンの場合、dynamic 蛍光比はstatic 蛍光比にくらべ 10^{-6} 倍程度と評価されている³²⁾。

入射イオンだけに注目してイオンの性質などを調べる方法にBeam-Foil-Spectroscopy (BFS) 法がある。10数年前から急にさかになってきたもので、数10 keV以上に加速された重イオンを非常にうすい炭素膜などを通過させた後、イオンから放出される光、X線あるいは電子のエネルギー、その強度などを測定しイオンの電離励起状態の性質を調べる方法である。(すでに本誌にも解説が出ているのでくわしいことは省略³³⁾)。初期のBFS研究テーマは可視紫外領域であったが最近ではX線領域すなわち重イオンの内殻電離へも興味ひろがってきた。軽いイオンでは通常E1遷移として禁止されている状態でも重イオンではスピン、軌道などの相互作用が強くなってくるので高次の遷移がおこるようになる。

たとえば $\text{Ar}^{16+,17+}$ イオンの励起状態からのX線、 $2^3\text{P}_2 \rightarrow 1^1\text{S}_0$ の M_2 遷移； $2^3\text{P}_0 \rightarrow 1^1\text{S}_0$ のinter combination 線、 $2^1\text{S}_0 \rightarrow 1^1\text{S}_0$ における $2 \cdot \text{E1}$ 遷移などが観測されている。他に、S, Cl, Ti, V, Fe, Krなどに関するこれらの状態の寿命などが測定され、理論と比較されている³⁴⁾。

BFSのみに利用出来る便利なX線スペクトロメータとしてDoppler-Tuned-Spectrometer (DTS) がある。高速で走るイオンから放出されるX線エネルギーは静止系からみるとDoppler シフトしていることを利用したもので、分解能が割によく、結晶スペクトロメータ

Fig. 14. Cl X-ray spectrum observed with DTS from 50.5 MeV Cl ions. The actual X-ray spectrum can be obtained by the differentiation of this spectrum.

一に比べ、はるかに“明るい”ので、加速器からえられる非常に弱いビームも利用出来る。スペクトルの一例を Fig. 14 に示す。H, He, Li 様の高電離状態の重イオンの性質を系統的に調べることはこれからの問題である。

通常内殻電離で生じる X 線およびオーグ電子は等方的に放出されると考えられ実験的にも確認されている。しかし高電離重イオンからの X 線は必ずしも等方的でないことが最近見いだされた³⁵⁾。X 線の非等方性はイオンの電荷がふえると共に増大する。このことはイオンのある励起状態へのターゲット電子の捕かく過程における電子整列 (alignment) によると考えられる。

4. 準分子軌道間の遷移

3)において重イオン衝突における入射イオンおよびターゲット原子からのいわゆる特性 X 線およびオーグ電子についてのべた。一方、2)において重イオン衝突の短い時間に準原子が形成されていることを示した。このような重イオン衝突で生じた内殻空席の寿命が短かく重イオンと原子が相互作用している間に空席が崩壊すれば (z_1+z_2) の原子番号をもつ準分子状態の分子軌道 (MO) 間の遷移が起ると予想される。このような遷移に対応する新しい形の X 線が 1972 年に観測され、一般に MO X 線とよばれている³⁶⁾。Fig. 1 に示した相関図を用いて説明しよう：今 $1s\sigma$ MO に空席が存在している（最初からあるいは何らかの衝突過程を経て形成された）と仮定すると、空席が $1s\sigma$ MO に沿って移動している間にこの内殻空席へ外殻電子がおちこむ可能性がある。この時放出される X 線は空席が崩壊した点の $1s\sigma$ MO と遷移し

Fig. 15. MO X-ray spectrum in 67 MeV Ni→Ni collisions. Note the end energy of the continuum is far away from the united atom K X-ray energy.

た電子の初期の MO とのエネルギー差に対応するエネルギーをもっているので、衝突後に空席が崩壊して生じる特性 X 線のような単色ピークを示すのではなく、両原子間の相互距離によって変化する $1s\sigma$ MO のエネルギー準位とそこでの崩壊確率によってきまる連続分布を示す。事実重イオン衝突における連続分布を示す MO X 線の高エネルギー端部のエネルギーは入射イオンのエネルギーとともに高い側に移動する。この事はイオンエネルギーとともに両原子間の最接近距離が小さくなり、一方 $1s\sigma$ MO がエネルギー的に深くなって行くことを示している。しかし動的衝突における MO レベルの変化によって、スペクトルのひろがり (collisional broadening) がおこり実際観測される MO X 線の高エネルギー端のエネルギーは融合原子 (z_1+z_2) の K 殻 X 線エネルギーをはるかにこえている。一例を Fig. 15 に示す³⁷⁾。

重イオンになると最初から $1s\sigma$ MO に空席が存在する確率は非常に低い。従って 1 回目の衝突でたとえば $2p\pi$ MO に生じた空席が $2p\pi-2p\sigma$ MO 結合で $1s$ (SA) へ移り、2 回目の衝突で $1s\sigma$ MO に沿って移動中に崩壊して $1s\sigma$ MO に対する X 線を放出すると考えられる。この種の 2 回衝突過程は固体あるいは分子状ターゲットでおこる。一方 z が大きくなるにつれ K 殻空席寿命は急激に減少するので 2 回目の衝突前に空席が崩壊する。このような時に観測される MO X 線は 1 回衝突によると考えられる。これは衝突前半に $1s\sigma$ MO に空席が生じまだ相互作用している間に空席が崩壊するいわば 1 回衝突過程に対応する。1 回あるいは 2 回衝突のいずれによるかを知るにはガスターゲットと固体ターゲットを用いて両者からの X 線強度またはスペクトルを比較すればよい。たとえば 0.2 MeV/amu 程度の低エネルギー Xe イ

Fig. 16. Anisotropy of MO X-rays in 39 MeV Ni-Ni collisions as a function of the X-ray energy.

オンと Hg (蒸気), Au (固体) 衝突では, $z \approx 134$ に対応する M 殻 MO X 線はほとんど 1 回衝突によるものであるという実験データがある³⁸⁾.

もしこのような MO X 線が運動している準分子から放出されるとすれば, それは Doppler シフトしているはずで, 事実観測された MO X 線の Doppler シフトからもとめた放出イオンの速度は c. m. 系における準分子の速度と一致することが 2~3 の衝突系で確認されている. また準分子軸は衝突の間回転しているのですこから放出される MO X 線は必ずしも等方的でない. Ni-Ni 系における MO X 線の異方性を Fig. 16 に示す³⁹⁾. ここで融合原子の K X 線エネルギーを越す付近で異方性が最大になり, その後極性が変化することに注意すべきである. この異方性はさらに注意してみると細かい振動がみられる. このような異方性が生じる理由として, 衝突時の電子の整列あるいは回転運動による準分子のエネルギー準位分離によるそれらの分子準位間の遷移などがあげられるがまだ明確な解析はなされていない. いずれにせよ, MO X 線に関しては完全な理解にはまだ程遠いといわねばならない.

このような準原子分子が重イオン衝突で生じているとすると重イオン, ターゲット原子の原子番号を大きくして行けばいわゆる超重原子が短時間ながら実現出来ることになる. 超重原子核の存在はまだ推測の域を出ていないが, 超重準原子 ($z_1 + z_2 \approx 132 \sim 145$) はすでに観測されている⁴⁰⁾. 原子核が有限の大きさであるとしてこのような超重原子分子における電子のエネルギー準位を計算すると, $z_1 + z_2 > 170$ になると $1s\sigma$ MO あるいは $1s$ (UA) の結合エネルギーは $-2m_0c^2$ (m_0 : 電子の静止質量, c :

Fig. 17. Energy levels of superheavy atoms as a function of nuclear charge.

光速) をこえる. このような状態では $1s\sigma$ MO はもはや離散的エネルギー準位でなくなり, 負の連続状態になってしまう (Fig. 17)⁴¹⁾. たとえば U-U 衝突系 ($z_1 + z_2 = 184$) では $1s\sigma$ MO は核間距離が 39 fm (10^{-13} cm) をすぎると負エネルギー状態になる. この負の連続状態はいわば, 陽電子の電離状態に対応するものである.

今 $1s\sigma$ MO に空席をもった重イオンが衝突する場合を考えると形成された準分子の $1s\sigma$ MO が負の連続状態へおちこむと余剰エネルギー $2m_0c^2$ が発生し, 電子-陽電子対 (e^-, e^+) が自発生成されることになる. 生じた e^- は K 殻の空席電子軌道にトラップされ, 一方 e^+ は軌道外へ放出されるという予想がなされている. 超重準原子からの e^+ を観測するには, $1s\sigma$ MO に空席がなければならない. しかし U のような重いイオンに K 殻空席を作ることは容易でない. たとえば U-U 系で最接近距離が 34 fm をこえるに必要なしきいエネルギーは 1600 MeV と考えられる. このエネルギーで $1s\sigma$ MO に空席が生じる断面積はまだ測定されていないので経験式などによって予想 (非相対論的) する他はないが今までのところ $10^{-4} \sim 10^2$ バーンと非常に不確定さが大きい⁴²⁾. 最近の理論計算では 2 バーンと予想されている⁴³⁾. いずれにしても $1s\sigma$ MO に空席をつくる確率はあまり大きくない. また U の K 殻空席寿命は 10^{-18} 秒程度で衝突時間にくらべかなり小さく, 1 回衝突が支配的になると予想される.

この超重原子からの e^-e^+ 放出現象は重イオン衝突における最大トピックのひとつであるとともに, 原子物理と原子核物理を橋わたしをする役目をもっている. 上述のような e^+ 放出の観測には多くのバックグラウンドが考えられ, クーロン励起による核反応からの e^+ 放出が最大のものと思われる. 理論計算によると観測角度をえらぶことによってこの種のバックグラウンドを区別出来, 超重原子からの自発放出による e^+ を観測出来ると予想されている⁴⁴⁾.

いままでは MO X 線のみについてのべた。当然オー
ジェ電子に対応する MO オージェ電子も存在するはず
である。しかし重イオン衝突では多くの連続エネルギー
分布をもつ電子が放出されるので観測はむずかしく、明
確にオージェ電子を測定したのは今のところ一例にすぎ
ない⁴⁵⁾。

5. 内殻空席の寿命

内殻空席の寿命は X 線スペクトルの決定、あるいは準
分子形成による内殻電離過程、特に MO X 線の発生機
構を調べる上で重要である。放射および非放射過程に対
する空席寿命の計算によると K 殻空席寿命は大きく τ に
依存し、炭素のような軽原子では 10^{-14} sec, U のよう
な重原子では 10^{-18} sec である。この計算値は K 殻のみ
に 1 個空席が発生した場合に対するものである。一方重
イオン衝突ではむしろ K 殻の他に L, M 殻にも多数の空
席が生じており、空席寿命はこれらの外殻電子にもつよ
い影響をうけるので、いろいろな電離状態をもつ空席寿
命の計算が必要であろう。

10^{-9} sec 以上の空席寿命測定に対してはイオンビーム
自身のパルス化の他かなりの方法がある。またすでにの
べた BFS 法を用いれば 10^{-12} sec 程度までの寿命を測定
出来る。この程度の寿命は主として外殻電子の励起状態
または準安定状態にある内殻空席の寿命に対するもので
 $10^{-14} \sim 10^{-16}$ sec の内殻空席寿命の測定には別の方法を
用いなければならない。その一例についてのべよう⁴⁶⁾：

固体ターゲット厚さ x を通過した後のイオンビーム中
で内殻空席をもつビームの割合を Y とすれば厚さ dx
での空席の増減は次式で表わされる：

$$dY/dx = -Y(\sigma_d + \sigma_c) + (1-Y)\sigma_v \quad (4)$$

ここで σ_d ：放射および非放射過程による空席崩壊断面
積、 σ_c ：電子捕かくによる空席崩壊断面積、 σ_v ：空席生
成断面積である。ターゲットへ入射する以前はイオンに
空席がないとして、厚さ x_0 を通過した時の X 線収量は
上式の簡単な積分から次のようになる ($N_x = \omega Y$)：

イオンからの X 線：

$$N_x^i(x_0) = \omega_i(\sigma_v/\sigma_T) \{ \sigma_d x_0 + \{1 - (\sigma_d/\sigma_T)\} \\ \times [1 - \exp(-\sigma_T x_0)] \} \quad (5)$$

ターゲットからの X 線：

$$N_x^t(x_0) = \omega_t(\sigma_v/\sigma_T) \{ \sigma_d x_0 - 1 + \exp(-\sigma_T x_0) \} \quad (6)$$

ここで $\sigma_T = \sigma_d + \sigma_c + \sigma_v$ 、 ω_i 、 ω_t はイオンおよびターゲ
ット原子の蛍光比である。

Fig. 18. Projectile and target X-ray yields as a function of target thickness.

これらの式からわかるようにイオンおよびターゲット
からの X 線強度はターゲット厚さに非直線的に増大す
る。ただ、 $\sigma_T x_0 \ll 1$ すなわち非常に薄いターゲットで
は入射イオンからの X 線はターゲット厚さ x_0 に比例す
るので σ_v をきめることが出来る。一方ターゲットから
の X 線は x_0^2 に比例して増加しこの X 線の発生が 2 回衝
突に起因していることを示す。 $\sigma_T x_0 \gg 1$ すなわち平衡状
態ではいずれも x_0 に比例する。

従って X 線量をターゲット厚さの関数として測定すれ
ば、イオンの X 線の場合 $\sigma_T x_0 \gg 1$ でのカーブの傾斜が
 $\sigma_d (= (nv\tau)^{-1})$ ： n ：ターゲット密度、 v ：イオン速度、 τ ：
空席寿命) に対応するのでイオンの空席寿命 τ がきま
る。一方ターゲットの X 線の場合 $x_0 = 0$ における切片
($-Y_0$) が σ_d^{-1} に、あるいは $\sigma_T x_0 \gg 1$ でのカーブの傾
斜が σ_d に対応するので、入射イオンの空席寿命 τ がも
とめられる。または測定されたターゲット厚さ - X 線量
カーブにフィットするようにパラメーターを調整すれ
ば、空席寿命 τ の他 σ_c 、 σ_v なども決定出来る。さらに
X 線強度の絶対測定から空席を有するイオンの割合
(Y) を決めることも可能になる。測定例を Fig. 18 に示
す。 Betz らによる測定で 95 MeV S イオンの空席寿
命は $\tau_{K\alpha} = 1.5 \times 10^{-14}$ sec, $\tau_{K\beta} = 3.3 \times 10^{-14}$ sec と決定さ
れた。 McGuire の計算値が 1.5×10^{-15} sec というのに
くらべ約 1 桁寿命が長い。このことはこの入射エネルギ
ーでの S イオンの平均電荷が 13+ であり電子は主とし
て K 殻に残りわずかな確率で L 殻に存在していることを
考慮すると理解出来る。従って結晶スペクトルを用いて
放出イオンの電子配位をきめた空席寿命の測定値はそれ
らに対する理論値とよく一致している⁴⁷⁾。

この方法の問題点として非常にうすい均一なターゲ
ット製作のむずかしさがあげられる。特に入射イオンの X

線測定から空席寿命をきめる際には自己保持形のターゲットが必要である。ターゲット原子のX線の測定する場合バックリングを使用出来るので幾分楽になる。比較的均一に製作出来る最小厚さは $50 \text{ \AA}$ ($\sim 1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) 程度であろう。この厚さのイオン通過時間は $10^{-15} \sim 10^{-16} \text{ sec}$ (入射エネルギー $20 \text{ keV}/\text{amu} \sim 2 \text{ MeV}/\text{amu}$ に対応して) であり、この方法を用いれば空席寿命の測定もこの前後でのみ可能であろう。

空席寿命をきめる方法として特性X線のかわりに、MO X線を使う方法⁴⁸⁾やターゲットの厚さを変化させるかわりにいろいろな結晶構造を用いて衝突時間をかえX線強度をはかる方法なども提案⁵⁹⁾されている。

6. 連続X線の発生

電子と固体ターゲットとの衝突でシャープなターゲットの特性X線の他、制動電子からの連続X線 (bremsstrahlung) が発生することはよく知られている。一方イオンとの衝突では質量が大きいためこの種の制動輻射は弱く無視出来ると考えられていた。しかし重イオンとの衝突実験が進むにつれ、いろいろな連続X線が観測されるようになり、重イオン衝突実験の解析に重要なポイントになってきた。ここでは重イオン衝突で観測される連続X線の発生機構をあげ、それらの特長をのべよう⁴⁹⁾。

6.1 二次電子の Bremsstrahlung (SEB)

入射イオンとターゲット原子との衝突で放出された二次電子が別のターゲット原子との衝突でその軌道が偏向される時生じるのは制動輻射 (Secondary Electron Bremsstrahlung) で SEB とよばれる。低エネルギーX線領域でその強度はつよく、連続X線の中で支配的であるが、 T_m (質量 M , エネルギー E_p) のイオンから質量 m の自由電子への最大エネルギー移動: $4(m/M)E_p$ をこえるとその強度は急激に減少する。エネルギー T_m をこえるX線放出に関与するのは主として内殻電子である。この種の SEB は2回の衝突が必要であり、ガスターゲットではほとんど問題にならない。陽子やヘリウムイオン衝突における SEB については理論実験両面からかなり解析が進み両者の一致もかなりよい⁵⁰⁾。しかし重イオンにおける二次電子放出に関する理論はまだ充分でなく従って SEB も充分理解されているとはいえない。

6.2 入射イオンによるターゲット電子からの Bremsstrahlung (PEB)

重イオン衝突で放出された二次電子が入射イオンのクーロン場で加速偏向を受ける際生じるもので Projectile-induced Electron Bremsstrahlung (PEB), Radiative

Ionization (RI), Primary Bremsstrahlung (PB) などとよばれている。これは 6.1 でのべた SEB と異なり1回衝突で生じるのでガスターゲットでも観測される。この PEB に対しては電子が最大加速度を受ける衝突すなわち後方散乱過程からの寄与が主となり従って低エネルギーの重イオン衝突で重要になる。しかし実験理論はまだ進んでいない⁶¹⁾。

6.3 入射イオンからの Bremsstrahlung (NNB)

入射イオンの核とターゲット核の相互作用による入射イオンの加速偏向によって生じる制動輻射で理論的にはよく調べられている⁵²⁾。高エネルギー領域のX線に対して重要になってくる。特にイオン衝突における REC (6.4 参照) ピークや融合原子の K X線より高いエネルギー領域では NNB のX線強度のエネルギー依存性は他の過程のX線にくらべて著しく異なっている。さらに他の連続X線と著しく違う点はイオン-原子の組合せによりX線の角度分布がいろいろ変化することがあげられる。理論計算によると重イオン衝突における NNB の角度分布は次式で表わされる：

$$\begin{aligned} d^2\sigma/dE_x \cdot d\Omega \propto & (z_1^2 z_2^2 / E_x \beta^2) (D^2 W_{E_1} \\ & + \mu^2 \beta^2 Q^2 W_{E_2} + 2\mu \beta D Q W_{E_1 \cdot E_2}) \end{aligned} \quad (7)$$

ここで $D = (z_1/A_1) - (z_2/A_2)$; $Q = (z_1/A_1)^2 + (z_2/A_2)^2$; W_{E_1} , W_{E_2} , $W_{E_1 \cdot E_2}$ は双極子, 四重極子およびそれらの干渉項に対する分布強度を表わし, μ は換算質量である。双極子項は $z_1/A_1 = z_2/A_2$ で消滅し, また双極子,

Fig. 19. Angular distribution of nuclear bremsstrahlung in 13.3 MeV ^{12}C - ^{58}Ni and 60 MeV ^{58}Ni - ^{12}C collisions.

Fig. 20. REC spectra (observed and calculated) 450 MeV Cu-C collisions. Note the contribution from various shell electrons and also that the observed peak is slightly higher than the calculated energy.

四重極子項はいずれも 90° 対称である。両者の干渉項によって非対称性が生じてくる。実験的には Trautvetter らによってくわしく調べられた。一例として $^{12}\text{C} \rightarrow ^{58}\text{Ni}$ および $^{58}\text{Ni} \rightarrow ^{12}\text{C}$ 衝突で生じた連続 X 線 (40~60 keV) の角度分布を Fig. 19 に示す⁵³⁾。入射イオンとターゲット原子を交換すると非対称性が全く逆転していることに注意すべきである。

6・4 放射電子捕かく (REC)

高電離状態特に H^+ , H , He 様の重イオンの内殻空席へターゲット原子核のまわりの電子が直接捕かくされた時発生するもので、その X 線のエネルギーは入射イオンでの内殻電子の結合エネルギーに、イオンとターゲットとの相対エネルギーを加えたものになる。ターゲット電子のエネルギーは広がりをもっていること、いろいろな軌道電子が寄与すること、衝突時における入射イオンの電荷が単一でないことなどのため、REC による X 線スペクトルはかなりの幅をもつようになる。一例として $\text{Cu} \rightarrow \text{C}$ 衝突で観測された REC スペクトルと計算によるスペクトルに対する各軌道からの寄与を Fig. 20 に示す⁵⁴⁾。この計算からも予想されるようにターゲット原子が重くなるほど多くの軌道電子の寄与のため、REC ピークはひくくなり幅が広くなりバンド状から連続スペクトルに近づいてくる。

従って REC からの X 線スペクトルを測定することによりターゲット内での電子の速度分布を知ることが出来る。また REC X 線の角度分布の測定も REC の機構を調べる上で重要であらう⁵⁵⁾。

Fig. 21. MO X-ray spectrum from very heavy ion atom collisions (Nb-Nb system). Note two different kinds of continuum X-rays.

Fig. 22. Energy diagram for Nb-Nb system. Note the very deep dip in $2p\sigma$ MO.

6・5 MO X 線

準分子原子から発生する MO X 線の特性的については、4 でのべたのでここでは補足だけにする。MO X 線スペクトルは MO 準位の形に依存するので非常に重いイオン-原子衝突では 4 でのべたものと幾分異なってくる場合が観測される。たとえば Nb-Nb 衝突で観測された連続 X 線を Fig. 21 に示す。Nb K X 線より高いエネルギー領域に性質が異なった 2 種類の連続スペクトルがみられる。Frank ら⁵⁶⁾によると 2 種類とも MO X 線に対応するもので、 C_2 の部分は 4 でのべたような $1s\sigma$ MO と高い準位にある MO 間の遷移による K 殻 MO X 線である。 C_1 の部分は Fig. 22 に示すように $2p\sigma$ MO への遷移による MO X 線であると説明されている⁵⁶⁾。比較的軽い原子の $2p\sigma$ MO のエネルギーは分離原子の $1s$ 準位のエネルギーより小さいが、重い原子になると遮へい効果のため $1s$ 準位よりも $2p\sigma$ MO 準位が深く

なってくる。従って $2p\sigma$ MO に対応する MO X 線のエネルギーは K X 線より高くなりかつ幅広いバンド状のスペクトルを示す⁵⁷⁾。一方 ガスターゲットを用いると C_2 部分は消滅し C_1 部分のみが残る。これは $1s\sigma$ MO の遷移に関係する MO X 線は 2 回衝突によって生じていることを示している。

6.6 2 光子放出による X 線

3.2 でものべたように, H, He 様重イオン衝突で $2s \rightarrow 1s$ 遷移などの際生じるものでこれらの間の E1 遷移は通常禁止されているが 2 光子放出 ($2 \cdot E1$) は可能である。この時の 2 つの光子のエネルギーは $h\nu_1 + h\nu_2 = \Delta E$ ($2s-1s$ 間のエネルギー差) できまる連続分布を示す。いずれもイオンあるいはターゲットの K X 線よりひくいエネルギーであるので MO X 線と区別出来る。

6.7 コンプトン散乱された γ 線

核反応で生じた γ 線が散乱された結果生じるもので実験条件によって異なったスペクトルを示す。重イオン衝突ではクーロン励起反応がつよくなり多くの γ 線が放出されるようになる。非常に重いイオンによるクーロン励起の研究はまだ充分進んでいないといえない。

7. 極微量元素分析への応用

重イオン衝突による内殻電離現象の応用については今までのべた中にもいろいろ考えられる。たとえば X 線スペクトルから化学結合の状態や valence 電子密度の決定が可能であろう。ここでは極微量 (10^{-12} g レベル) 元素分析への応用についてのべよう。その原理は非常に簡単で、数 10 keV - 数 MeV のイオン衝突によって生じる X 線のスペクトルおよびその強度の測定からターゲット中に存在する元素の種類と量を決定しようというものである。

この方面への応用には重イオンよりもむしろ陽子、ヘリウムイオンが用いられる⁵⁸⁾。その理由は陽子などの軽いイオンによる電離断面積が実験的理論的によくわかっていて、イオンの加速が容易なことなどがあげられる。

陽子などの軽イオンを用いた際の特長として次のような点をあげることが出来る：

- Si(Li) 検出器を用いると $z > 10$ 以上の元素をほとんどすべて同時に測定出来るので、1 回の測定でかつ測定時間が短かくてよい。
- バックグラウンドが非常に低いため、検出感度が高く、測定元素によってその感度があまり大幅に変化しないこと。
- 電離断面積が知られているので、存在元素の絶対

Fig. 23. X-ray spectrum from aerosol in 3.5 MeV proton impact.

量が決定出来ること。

- ごく少量のサンプルでよく、かつ非破壊的であることなど。

この測定法の検出感度を制限するものは主として SEB と NNB および核反応による γ 線であろう (6 章参照)。これらのバックグラウンドについては理論的にもかなりよく理解されているので、理論的な検出感度を評価することが出来る⁵⁹⁾。この感度は用いるイオンのエネルギー、測定すべき元素によって幾分異なるが、大体の目安として $10^{-6} \sim 10^{-8}$ (1 ppm ~ 10 ppb) と考えてよい。すなわちビーム直径 2 mmφ で $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ のサンプル中の 10^{-12} g 程度の元素の検出が可能である。さらにビーム集束をよくしておけば 10^{-15} g 程度も可能であろう。問題はむしろこれらのサンプルを支持する高純度の膜を如何にして作るかにある。

イオンを用いると X 線や電子ビームを用いた分析法にくらべ、イオン加速器そのものが大形になりその運転もやや面倒になるが運転費や検出費は必ずしもたかくない。一例として、新しくこの種の分析用にバンデグラフ形加速器を購入しても、サンプルあたり 100 円位で運営出来るということである。Davis 大学のサイクロトロンではこの方法で California 州各地の大気中の汚染物質を定期的にモニターし、 10^{-9} g/m³ (空気) レベルの物質を 10% 程度の精度で測定している。我々が測定した空気中の元素からの X 線スペクトルの一例を Fig. 23 に示す。Br や Pb の存在がわかる (U は内部標準用として用いた)。これらの元素は主として自動車から排出されているという事実もこの方法を用いて確認された。

大気汚染の他、井戸、河川水などの液体、海底や地表での土壌からのサンプルあるいは生体中での重金属元素の分布などの測定が各地でさかんに行なわれている。く

わしくは Johansson らの文献を参照されたい⁵⁸⁾。

一方、重イオンの加速には大形装置が必要なこと、前述のように、重イオン衝突によるX線スペクトルは多重電離のためそのエネルギーが高い方へずれていること、蛍光比が増大していること、ピーク幅が広がっていること、REC その他のバンド状のピークが現われることなどのため、元素の確認が困難になってくるので、重イオンによる分析はほとんど行なわれていない。しかし、2章でのべた電子昇位による level matching 現象を用いて、“選択的電離”を起させ、固体マトリックス中の極少量の不純物を測定することが出来る。この場合は測定すべき元素の内殻電子のエネルギー準位を考慮してイオンの種類とそのエネルギーを選ぶ。

一例として Si 中に注入した Sb の分布を決める際 Kr イオンを用いた場合をとる。ほぼ 65 keV から Sb からの MX 線が観測されはじめ、約 100 keV になると MX 線強度はほぼ飽和する。この際 Sb の MX 線は 5fσ MO を経由しての電子昇位で生じる。一方、Si からの KX 線あるいは Kr からの LX 線は 140 keV 附近から発生しはじめる (3dσ MO を経由する)。すなわち 140 keV 以下のエネルギーを有する Kr⁺ イオンを用いると、Si マトリックスの中でも Si KX 線は発生せず、Sb MX 線のみが観測される。一方同じサンプルで陽子を用いると Sb MX 線はつよい Si KX 線のすそにうずもれてしまう可能性が大きい。このような効果を用いると、低エネルギー重イオンの物質中での飛程が非常に短いことから固体のごく表面附近 (数 10~100 Å) の不純物などを調べるのに最適である。従って表面を徐々にエッチングして注入したイオン元素の固体中でのプロファイルを決定することが出来る。同様にチャネルリング現象と組合わせて固体中に存在する不純物イオンの格子位置をきめることも可能である。

8. お わ り に

最近の重イオン衝突研究において、次々と新しい成果がえられており、限られた紙面ではその一部しか述べることが出来ない。くわしくは国際会議の proceedings (たとえば参考文献 7, 8, 34 など) を参考にされたい。これまでごく散発的に行なわれた重イオン衝突研究もだんだん系統的に進められるようになり、これらの成果は原子物理のみならず天体物理、プラズマ核融合あるいは核物理などいろいろな方面の研究と深い関係があり、それらへの応用上でも大切なものである。

今まで日本におけるこの種の研究は実験装置が不十分なことなどから多くの面でおくれていたように思われ

る。さいわい、現在理化学研究所の重イオン線形加速器、原子力研究所の大形タンデム形加速器などの計画が進行中であり 2~3 年のうちには完成し、重イオン衝突研究にも広く利用出来る予定である。これらの装置をもとにして国内における衝突研究の発展を期待したい。

References

- 1) E. Merzbacher and H. Lewis: Handbuch der Physik (Berlin, 1958) vol. 34, p. 166.
- 2) D. H. Madison and E. Merzbacher: Atomic Innershell Processes (Academic Press, 1975) vol. 1, p. 1.
- 3) W. M. Coates: Phys. Rev. **46**, 542 (1934).
- 4) H. D. Betz: Rev. mod. Phys. **44**, 465 (1972).
- 5) N. Bohr: Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd., no. 8, vol. 18 (1948).
- 6) 俵 博之: 日本物理学会誌 **29**, 37 (1974).
- 7) Proc. IX-th International Conf. Physics of Ionic and Electronic Collisions (Seattle, 1975).
- 8) Proc. 2nd International Conf. Innershell Ionization Phenomena (Freiburg, 1976).
- 9) Q. C. Kessel and B. Fastrup: Case Studies in Atomic Physics **3**, 137 (1973).
- 10) U. Fano and W. Lichten: Phys. Rev. Letters **14**, 627 (1965).
- 11) M. Barat and W. Lichten: Phys. Rev. A **6**, 211 (1972); J. Eichler, U. Wille, B. Fastrup and K. Taulbjerg: Phys. Rev. A **14**, 707 (1976).
- 12) Th. P. Hoogkamer, P. Woerlee, S. Doorn, F. W. Saris and H. Tawara: Contributed paper in 2nd Int. Conf. Innershell Ionization Phenomena (Freiburg, 1976) p. 50).
- 13) J. S. Briggs and J. H. Macek: J. Phys. B **6**, 982 (1973).
- 14) K. Taulbjerg, J. S. Briggs and J. Vaaben: J. Phys. B **9**, 1351 (1976); R. D. Piancetini and A. Salin, J. Phys. B **9**, 959 (1976).
- 15) W. E. Meyerhof: p. 53 in ref. 12.
- 16) C. Foster, Th. P. Hoogkamer, P. Woerlee and F. W. Saris: J. Phys. B **9**, 1943 (1976).
- 17) J. R. Mowat, I. A. Sellin, D. J. Pegg, R. S. Peterson, M. D. Brown and J. R. McDonald: Phys. Rev. Letters **30**, 1289 (1973).
- 18) R. Anholt, J. Ioannou-Yannou, H. Bowman, E. Rauscher, S. Nagamiya, J. O. Rasmussen, T. Shibata and H. Ejiri: Phys. Letters **59 A**, 429 (1977).
- 19) P. Richard, I. L. Morgan, T. Furuta and D. Burch: Phys. Rev. Letters **23**, 1009 (1969).
- 20) J. M. Hansteen and O. P. Mosebekk: Phys. Rev. Letters **29**, 1361 (1972).
- 21) K. W. Hill, B. L. Doyle, S. M. Shafroth, D. H.

- Madison and R. D. Deslattes : Phys. Rev. A **13**, 1334 (1976).
- 22) C. F. Moore, J. J. Macey, L. E. Smith, J. Bolger, B. M. Johnson and D. L. Mathews : J. Phys. B **7**, L 302 (1974); D. Schneider, C. F. Moore and B. M. Johnson : J. Phys. B **9**, L 153 (1976).
- 23) A.R. Knudson, D.J. Nagel and P.G. Burkhalter : Phys. Letters : **42 A**, 69 (1972).
- 24) Y. Awaya et al. : private communication; 栗屋容子, 出雲光一 : 応用物理 **45**, 905 (1976).
- 25) D. L. Mathews, B. M. Johnson and C. F. Moore : Phys. Rev. A **10**, 451 (1974).
- 26) R. L. Kauffmann, K. A. Jamison, T. J. Gray and P. Richard : Phys. Rev. Letters **36**, 1074 (1976).
- 27) R. L. Watson, T. Chiao and E. E. Jensen : Phys. Rev. Letters **35**, 254 (1975).
- 28) C. F. Moore, D. L. Mathews and H. H. Wolter : Phys. Letters **54 A**, 407 (1975).
- 29) T. Åberg, K. A. Jamison and P. Richard : Phys. Rev. A **15**, 172 (1977).
- 30) 俵 博之 : 理研重イオン原子分子研究会報文集 p. 69 (1976).
- 31) R. J. Fortner and D. L. Mathews : Phys. Rev. A **14**, 2357 (1976).
- 32) D. L. Mathews, R. J. Fortner and G. Bissinger : Phys. Rev. Letters **36**, 664 (1976).
- 33) 石井慶之, 福田国弥 : 分光研究 **24**, 1, 131 (1975).
- 34) H. Gould and R. Marrus : Beam Foil Spectroscopy-Heavy Ion Atomic Physics (Plenum Press, 1976) p. 305.
- 35) S. J. Czuchlewski, L. D. Ellsworth, J. A. Guffey, E.H. Pedersen, E. Salzborn and J.R. McDonald : Phys. Letters **51 A**, 309 (1975).
- 36) F. W. Saris, W. F. Van der Weg, H. Tawara and R. Laubert : Phys. Rev. Letters **28**, 1298 (1972).
- 37) W. Frank, P. Gippner, K. H. Kaun, P. Manfrass and Yu. P. Tretyakov : Dubna report E7-9065 (1975).
- 38) W. Enders, F. Folkmann, C. H. Heitz, G. Kraft and P. Mokler : GSI PB-4-75 (1976).
- 39) J. S. Greenberg, C. K. Davis and P. Vincent : Phys. Rev. Letters **33**, 473 (1974); W. Woelfli, Ch. Stoller, G. Bonani, M. Stockli, M. Suter and W. Dappen : Phys. Rev. Letters **36**, 309 (1976).
- 40) P. H. Mokler, H. J. Stein and P. Armbruster : Phys. Rev. Letters **29**, 827 (1972).
- 41) B. Muller, H. Peitz, J. Rafelski and W. Greiner : Phys. Rev. Letters **28**, 1235 (1972).
- 42) W. Meyerhof : private communication (1976).
- 43) W. Betz, G. Soff, B. Muller and W. Greiner : Phys. Rev. Letters **37**, 1046 (1976).
- 44) V. Oberacker, G. Soff and W. Greiner : Phys. Rev. Letters **36**, 1024 (1976).
- 45) V. V. Afrosimov, Yu. S. Gordeev, A. N. Zinoviev, D. H. Rasulov and A. P. Shergin : post dead line paper in ref. 12 (1976).
- 46) H. D. Betz, F. Bell, H. Panke, G. Kalkoffen, M. Welz and D. Evers : Phys. Rev. Letters **33**, 807 (1974); L. C. Feldman, P. J. Silverman and R. J. Fortner : Nucl. Instr. Meth. **132**, 29 (1976); K. H. Scharfner, Th. Hoogkamer, P. Woerlee and F. W. Saris : Nucl. Instr. Meth. **132**, 35 (1976).
- 47) S. L. Varghese, C. L. Cocke, B. Curnutte and G. Seaman : J. Phys. B **9**, L 387 (1976).
- 48) K. Morita et al. : private communication (1976).
- 49) D. H. Jakubassa and M. Kleber : Z. Phys. **A 273**, 29 (1975).
- 50) F. Folkmann, C. Gaarde, T. Huus and K. Kemp : Nucl. Instr. Meth. **116**, 487 (1974); K. Ishii, S. Morita and H. Tawara : Phys. Rev. A **13**, 1311 (1976).
- 51) R. Anholt and T. K. Saylor : Phys. Letters **56 A**, 455 (1976).
- 52) K. Alder, A. Bohr, T. Huus, B. Mottelson and A. Winter : Rev. Mod. Phys. **28**, 432 (1956); J. Reinhardt, G. Soff and W. Greiner : Z. Phys. **A 276**, 285 (1976).
- 53) H. P. Trautvetter, J. S. Greenberg and P. Vincent : Phys. Rev. Letters **37**, 202 (1976).
- 54) H. D. Betz, F. Bell, E. Spindler, M. Kleber, H. Panke and W. Stehling : p. 461 in ref. 34.
- 55) M. Kleber and D. H. Jakubassa : Nucl. Phys. **A 252**, 152 (1975).
- 56) W. Frank, P. Gippner, K. H. Kaun, H. Sodan and Yu. P. Tretyakov : Phys. Letters **59 B**, 41 (1975).
- 57) K. H. Heinig, H. U. Jaeger, H. Richter and H. Woittennek : Phys. Letters **60 B**, 249 (1976).
- 58) S.A.E. Johansson : Nucl. Instr. Meth. **137**, 473 (1976); F. Folkmann, J. Phys. E **8**, 429 (1975).
- 59) Walter Shearer-Izumi : Private communication.

(追記) 日本物理学会誌1977年4月号に「原子衝突」が特集されている。内殻電離のみならず、広い範囲の衝突現象をとりあつかっている。