報 文

ORIGINAL PAPERS

イオン減速法によるターゲットの作製

Target Preparation by Ion Retarding Method

千 田 勝 久* 金子 粂 太 郎* 坂 井 光 夫*

KATSUHIKA CHIDA, KUMETARO KANEKO, MITSUO SAKAI

(1966年7月4日受理)

Studies of direct deposition of decelerated ions from an isotope separator on thin foils were reported. Fundamental behavior of decelerated ions was investigated by measurement of ion currents to various electrodes placed in the collector part. A magnetic field of 1000 gauss produced by a permanent magnet was set in the place of decelerating electric field, so that one can measure the ion current without electron contamination and avoid accelerated electrons from bombarding the target. The attachment efficiency was studied as a function of final energy of ions, backing materials and their thickness. From these studies, optimum working conditions for obtaining good deposition were obtained. The ion beam used in the present experiments was that of Mg^{24} and the backing materials were Au, Cu, Ni and Ta foils.

As examples, Mg^{24} with a thickness of $500 \mu g/cm^2$ was obtained on a Au foil of 5μ thickness with a current density of $30 \mu A/cm^2$ and Mg^{24} with a thickness of $300 \mu g/cm^2$ was obtained on a Au foil of 0.5μ thickness with a current density of $20 \mu A/cm^2$.

1. 序

原子核反応の研究に使用されるターゲットとしては薄い金属箔或は有機薄膜の上にターゲット物質をつけたものがしばしば用いられる。このようなターゲットを作るにはあらかじめ同位体分離器で分離した濃縮同位体を所要のバックング上に電解鍍金又は真空蒸着等の方法で付着させるのが普通である。しかるにこの方法ではコレクターポケットの母材よりの化学分離、電解鍍金又は真空蒸着の各処理過程に多くの技術上の困難及び同位体の大きな損失を伴うものである。カルトロニ*のような大型同位体製造装置と異り、INS同位体分離器のような中型の実験室用器械では、分離能力に限界があるのでこのような方法は多くの場合殆んど

不可能となる。併し若し収束面上に希望のバックングを置き要求する同位体のイオンビームを当てて直接付着させることが何等かの方法で出来るならば、分離と同時にターゲットの作製も可能となり操作が非常に簡単で損失も少く、多くの同位体についてターゲットを作ることが可能になると考えられる。

このように薄いバックング上に分離同位体を付着させたターゲットを簡単に得るために考えられたのがイオン減速法である。イオン源から30KV程度に加速されたエネルギーの高いイオンビームを数十 $\mu A/cm^2$ の電流密度で直接薄いバックングに当てる場合には、熱のため或はスパッターによってたちまちバックングは破損してしまう。この困難を除くためにはバックングに衝突する時のイオンエネルギーを小さくしてやる必要があると考えられる。即ちコレクターのポテンシャルをイオン源のポテンシャル近くまで上げてやり、加速されたイオンビームをターゲット直前で減速し、イオンの最終エネルギー ΔV (通常1KV程度) を小さ

東京大学原子核研究所 (東京都北多摩郡田無町)
Institute for Nuclear Study University of Tokyo (Tanashi-machi, Kitatama-gun, Tokyo)

* アメリカ、オーリクツの180°型大型同位体分離器

くする。このような考え方はすでに色々の場所で実行されている。コペンハーゲンでは $1\mu\text{A}$ のイオンビームを用い Lu^{176} を $1 \times 5\text{mm}^2$ の面上に $30 \sim 40\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の厚さに付着させた¹⁾。INS 同位体分離器でも減速法が試みられて来た²⁾³⁾。また β -ray の source として稀ガス等をバックングの表面層に浅くたたき込む場合にも減速法が用いられている⁴⁾。

今までの INS で行われた減速法の経験では厚いバックングについては良い結果が得られた (160μ 厚 Au 上に Mg^{24} を 21.6mg 付着させた⁵⁾) が、薄いバックングについては付着量が比較的少なかったり、バックングが破壊したりしてあまり良い結果は得られていなかった。この原因として

1) 熱によるバックングの破壊

a. 最終エネルギー ΔV をもった荷電粒子による発熱

b. 電子が逆に加速されてコレクターに入りバックングを衝撃することによる発熱。この電子はビーム中の電子又はスリットの縁からの二次電子等と考えられる。

c. 中性粒子による発熱 (イオンの電荷交換等により高速中性粒子を生ずる)

2) スパッタリング。

a. バックングの分子又は原子がスパッタリングにより飛び出す。このためイオンも附着しないことが考えられる。

b. イオンがバックングに附着して来た場合セルフ

スパッタリングになり多量に捕集することが出来なくなる。

3) イオンがターゲットへ到達してないこと。

a. 空間電荷の関係でターゲット附近のポテンシャルが上昇し、イオンが実際にターゲットに到達しないではね返される。

b. 一度ターゲットについたイオンがそのまま附着しないでイオンのままで飛出すことがあり得る。等が考えられた。

今までの減速法による捕集で最も障害になっていたと考えられるのはターゲットに入ってくるイオン電流が放電或は漏洩電流のために測定出来なかったことであって、このため現象の正確な把握及びバックングへの捕集量の推定等が充分なされなかったことである。

この欠点を除くためにコレクターを改良し、又ターゲットに来る電子を除くため永久磁石をコレクター部に設置した。実験には Mg^{24} のビームを用い、まず基本的な条件を把握するために最終エネルギー ΔV とターゲットに到達するイオン電流の関係を調べた。次に Au , Cu , Ni , Ta , の各種バックングについて厚さと ΔV 及び捕集効率についての関係すなわち捕集可能な条件を調べた。最後に長時間捕集を行って電流積算量による推定捕集量と実収量との関係及びセルフスパッターがどの程度影響を及ぼすものかを吟味した。

2. 改良コレクター

Fig. 1 に INS 同位体分離器概略図を示す。イオン

Fig. 1. INS Isotope separator.

Fig. 2. Collector top view.

減速法の実験に用いられるコレクターは図に示したポケットの位置に設けられるもので Fig. 2 及び Fig. 3 に示すようなものである。Earth plate 及び reflected ion collector はメーターを通してアースされている。その間に電子阻止用の negative electrode があり -1 KV の電圧を掛けて電子に対する障壁となし、イオンビーム中の電子或は earth plate の slit の縁に衝突したイオンによる二次電子が加速されてターゲットに衝突するのを防いでいる。高圧になるコレクター自身は円筒状のものであって、全体はアクリルの絶縁物で絶縁されている。この円筒の内部にターゲット及びイオン収束電極が配置されている。ターゲットの所に希望するバックリングを置き ΔV のエネルギーに減速された

イオンビームを当て付着させる。イオン収束電極は減速されたイオンビームが発散するのを防ぐために設けたものである。ターゲット及びイオン収束電極は各々絶縁され、シールド線でコレクター筒外に接続されており独立に電流を測定することが出来る。またこの両電極は同一電位の保護円筒の中に入りており充分シールドされている。約 1,000 ガウスの磁場は Fig. 3 に於て紙面に垂直に裏面から表面の方向に向いており、帯状のイオンビームは図示の如く曲線を描いてターゲットに到達する。一部は引返して reflected ion collector に当り二次電子を放出する。放出された電子はコレクターに引かれるが磁場中で 15KV のエネルギーとして数 mm の曲率半径で複雑なラセン運動をしながらイオン収束電極或は保護円筒に当り、ターゲットまで到達することは殆んどないと考えられる。従ってターゲットの電流はイオン電流のみと考えて良いであろう。

ターゲットの所におく薄いバックリングは Fig. 2 に示したように plate A で固定されている。イオンビームが磁場中で曲るためにイオンの付着する面積はバックリング上のほぼ中央から上の部分で約 4 cm^2 である。また plate A と plate B の重さを測ることによって、一度バックリングに当たったイオンがそのまま付着しているか或はスパッターして反対の面につくのか大体の目安をつけることが出来る。

ΔV 電源及びコレクター接続図を Fig. 4 に示す。

3. イオンの最終エネルギー ΔV とターゲット電流の関係

ターゲットへのイオンの最終エネルギー ΔV は単にバックリングへの影響だけでなく減速イオンビームの発散及び引返しに大きく影響する。この基本条件を把握するために ΔV を変化させた時のターゲット電流及び収束電極、reflected ion collector の各電流を測定した。Fig. 5 にその関係を示す。 ΔV の大きい 3KV 附近ではイオンビームはほとんどターゲットに当り、収束電極に当るイオンや reflected ion collector に引返すイオンは少い。 ΔV が減少するとイオンビームは発散してターゲット電流は減少し、収束電極電流は増加する。さらに ΔV を減ざると、今度は引返すイオンが多くなって来て reflected ion collector の電流が増加する。収束電極電流はある点で極大となって、急激に減少する。ターゲット電流も減少して $\Delta V=0$ ではイオンはターゲットに到達しない。収束電極電流は $\Delta V=0$ 附近で負となるが、これはターゲットに到達出来ずに引返したイオンが reflected ion collector に当りそこから出た二次電子が保護円筒及び収束電極に入るためと考えられる。

Fig. 3. Collector side view.

Fig. 4. ΔV power supply.

4. 種々のバックング及び ΔV に於ける付着効率

Fig. 5. Current to the electrode.

実際にターゲット上へイオンを有効に捕集するためには、ターゲットに衝突するイオンのエネルギー ΔV バックング材質及び厚さの組合せにおける付着効率を知ることが必要である。バックングの材質 Au, Cu, Ni, 及び Ta について種々の厚さと ΔV の値に対する Mg の捕集効率の関係を調べた。Fig. 6 にその結果を示す。カッコ内の数字は実収量とターゲット電流積算量による推定収量との比である。この場合の実収量とは捕集後の Mg の付着したバックングの重量から捕集前のバックングの重量を差引いたものである。重量測定は自動天秤メトラーを使用した。天秤の感量は $10\mu\text{g}$ である。電流積算量は15分間隔でターゲット電流を測定しグラフに描いて積算した。

この図からわかるように 10kV 以上のエネルギーの高いところでは 0.5μ の薄いバックングでは破損してしまい、 5μ から 20μ 程度の比較的厚いバックングでもスパッターしてしまって重量が減ったり、ついても非常に少い。しかし 50μ から 100μ 程度の厚いバックングでは付着効率はあまり良くないがついている。これは厚いための冷却効果のことも当然考えられるが、単にそれだけでなくバックング材質のスパッターの難

Fig. 6. Relation involving sticking factor, backing material thickness and ΔV .

易などにもよるものと考えられる。例えば Au ではエネルギーが高いと厚いバックリングでもスパッターしてしまう。2.5kV 程度のエネルギーになってもスパッターする状況は大体同様である。4V を 1kV まで減ざると厚いバックリングでは捕集効率が増加し 0.5 μ の薄いバックリングでも破損されないでイオンは付着している。このように定性的ではあるが、実用的な観点から、厚さと 4V に対する捕集の関係が測定され、図の如く捕集可能の領域がほぼ明らかとなった。実際の捕集において Fig. 5 の 4V とターゲット電流の関係との関連において適当な 4V を選定すれば良い。すなわちバックリングの厚さとの兼ね合いで破損しない、スパッターしない程度に 4V を大きくした方がターゲット電流が多くなるので良い。現在 1kV 程度で一番良い結果が得られている。

減速法での運転上で注意しなければならないことはコレクターでの放電を極力おさえることである。放電々流が流れることによって 4V が上昇し (3kV 以上に

なる) バックリングに衝突するイオンのエネルギーが増す。厚いバックリングで捕集している場合にはあまり問題はないが、0.5 μ 程度の薄いものでは 4V に非常に依存することは Fig. 6 から明らかなことである。コレクター部は捕集中に良い真空中に保つように注意しなければならない。

5. 捕 集 量

Table 1 に種々のバックリングと 4V の値で捕集した時の電流、電流密度、電流積算量及び捕集量を示す。Table においてターゲット、plate A、plate B はそれぞれ Fig. 2 に示したバックリング、plate A、plate B の付着量であり、もちろんターゲットへの付着量が増大することが望ましい。plate A が増加するのは 4V の小さいときイオンビームが発散したり、イオンのスリット面への入射方向が垂直からずれているときはバックリングの面から外れて plate A に付着するものである。10 μ Au および 20 μ Cu の 4V=20kV すなわち減

Table 1. Collected quantities for various backings, ions and 4V

Ion	Backing t [μ]	4V [kV]	Imean [μ A]	Jmean [μ A/cm ²]	Imax [μ A]	Imean $\times$ t [μ Ah]	Estimated quantities [μ g]	Collected quantities 4W [μ g]		
								Target	Plate A	Plate B
Mg	100 Ta	0.35	1×10^2	—	2×10^2	3×10^2	3×10^2	1.8×10^2	2.4×10^2	1.3×10^2
"	100 Ta	1.0	2×10^2	4×10	3×10^2	1.2×10^3	1×10^3	6.4×10^2	4.7×10^2	1.6×10^2
"	50 Ni	0.35	4×10	—	8×10	2×10^2	2×10^2	1.6×10^2	2.4×10^2	1.8×10^2
"	50 Ni	1.0	2×10^2	3×10	3×10^2	9×10^2	8×10^2	6.9×10^2	2.8×10^2	1.6×10^2
"	50 Ni	15	2×10^2	5×10	4×10^2	1.1×10^3	1×10^3	5.2×10^2	-1×10	1.9×10^2
"	5 Cu	1	4×10	2×10	8×10	4×10^2	4×10^2	2.7×10^2	6×10	5×10
"	5 Cu	15	3×10^2	9×10	4×10^2	1.0×10^2	9×10^2	1.5×10^2	3×10	2.9×10^2
"	20 Cu	1	5×10	2×10	8×10	6×10^2	6×10^2	5.5×10^2	7×10	6×10
"	20 Cu	20	5×10^2	1×10^2	6×10^2	1.6×10^3	1.4×10^3	-9.4×10^2	9×10	6.5×10^2
"	100 Cu	20	3×10^2	1×10^2	4×10^2	1.5×10^3	1.4×10^3	5.2×10^2	7×10	3.3×10^2
"	0.5Au	1	6×10	2×10	2×10	1.3×10^3	1.2×10^3	1.2×10^3	2.4×10^2	1.6×10^2
"	0.5Au	1	5×10	1×10	1×10^2	1.7×10^3	1.5×10^3	1.8×10^3	3.8×10^2	5.1×10^2
"	0.5Au	1	1×10^2	4×10	3×10^2	1.1×10^3	1×10^3	1.2×10^3	1.4×10^2	1.1×10^2
"	0.5Au	1	1×10^2	3×10	3×10^2	2.4×10^3	2.2×10^3	1.8×10^3	6.6×10^2	6.5×10^2
"	0.5Au	15	4×10					destroyed		
"	0.5Au	2.5	6×10	4×10	1×10^2	4×10^2	4×10^2	-1.1×10^2	-1.0×10^2	2×10
"	5 Au	1	5×10	2×10	2×10^2	4×10^2	4×10^2	3.2×10^2	3×10	2×10
"	5 Au	1	8×10	2×10	2×10^2	7×10^2	7×10^2	7.0×10^2	1.8×10^2	1.5×10^2
"	5 Au	1	9×10	3×10	2×10^2	8×10^2	8×10^2	9.0×10^2	1.5×10^2	3×10
"	5 Au	1	7×10	2×10	1×10^2	5×10^2	5×10^2	5.8×10^2	2.2×10^2	1.0×10^2
"	5 Au	2.5	5×10	4×10	1×10^2	3×10^2	3×10^2	-4×10	5×10	9×10
"	10 Au	2	2×10^2	6×10	3×10^2	2×10^2	2×10^2	-4.0×10^3	2.4×10^2	1.1×10^3
Li	1 Ni	0.5	1.4×10^2	2×10	3×10^2	4.7×10^3	1.2×10^3	4×10^3	—	—
"	1 Ni	0.5	1.5×10^2	2×10	4×10^2	4.8×10^3	1.3×10^3	3×10^3	—	—

速しないで直接ターゲットにあてて捕集した時のように ΔV の大きいところではスパッターしてしまってターゲットの重量は減少し、plate B の方に付着している。 $\Delta V=1\text{KV}$ の低いところでは plate B の方にスパッターしてつくのは少く良い結果が得られている。 $0.5\mu\text{Au}$ 上に全体で 1.2mg 、単位面積当り約 $300\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 捕集している。

また長時間捕集を継続して多量に付着させた場合に付着量が電流積算量に比例して直線的に増加するかどうかという点は重要な問題である。捕集の初期の段階においては Mg イオンとターゲットのスパッタリングの関係であるが次第に付着して来ると Mg 自身のセルフスパッタリングになる。Alm⁽⁶⁾ 等の 45KeV における Mg のセルフスパッタリングのデータは約 0.5 atoms/ion である。スパッター比 S はイオン衝撃によるものでは $S \propto E^{1/2}$ あるいは $S \propto E$ といわれている⁷⁾⁸⁾ (E はイオンの運動エネルギー) ので 1kV では Mg に関しては問題はないように思われる。 $5\mu\text{Au}$ バッキング上に長時間捕集した場合の結果を Fig. 7 に示す。 $2\text{mg}/4\text{cm}^2$ までは直線的に増加した。

Fig. 7. Build up of Mg^{24} .

多量に捕集する場合に注意すべき点としてはバッキング上に付着した Mg が剝離することがある。数 $100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度の比較的多量の捕集の場合には重要な問題である。 Mg 以外の不純物については例えば収束電極の材質である Cu については捕集後のターゲットの化学分析によっては認められなかった。

6. 結 論

放電や漏洩電流のため今まで測定出来なかったイオン電流を測定するためコレクター部を改造し、最終エネルギー ΔV 、バッキングの厚さ及び捕集効率について相互関係を調べ捕集可能領域を明らかにした。

実際の捕集としては $5\mu\text{Au}$ バッキング上に $30\mu\text{A}/\text{cm}^2$ の電流密度で $500\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の Mg^{24} を得た。また $0.5\mu\text{Au}$ の薄いバッキングでも破損することなく $20\mu\text{A}/\text{cm}^2$ で $300\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度付着させることが出来た。

今後種々の元素のイオン及び色々の材質の組合せについてテストして行く予定である。減速法での将来の問題点としてはスパッタリングに関することであると考えられる。この問題については色々の文献があるが、⁶⁾⁹⁾¹⁰⁾ 我々の問題としているイオンエネルギー領域でイオンの種類、コレクター物質の相互関係について明確な見通しを与える考え方はないようであり、実際のな面からも学問的な興味からも充分な研究がなされることが望ましい。

終りに化学分析して頂いた荒谷美智氏及び装置の運転に協力された水谷道雄氏に感謝する。

追 補

この減速法を用い、第6回共同利用において Li^6 の捕集を行い、 1μ 厚 Ni foil 上に $700\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の厚さに附着させた。コレクターは油で冷却出来るように改良したものを用いた。平均電流 $I_{\text{mean}}=140\mu\text{A}$ 平均電流密度 $j_{\text{mean}}=20\mu\text{A}/\text{cm}^2$ Ni foil 上の附着面積は約 $2.5 \times 2.3\text{cm}^2$ である。Table 1 の最後の2行にこのときのデーターを示す。計算による推定量より実収量が多くなっているが、かなりの量酸化物になっているものと思われる。これが捕集中によるものか捕集後空気中に出してから酸化物になった或は空気中の水分を吸収したものであるかは不明である。

また $0.5\mu\text{Au}$ foil 上に附着させるテストも行ったが、この場合は Li と Au が反応して何か合金を作るらしくシワになって核実験に使用出来るターゲットは得られなかったが、バッキングは破壊されなかった。

文 献

- 1) B. Elbek, M. C. Olesen and O. Skilbreid, *Nucl. Phys.*, **10**, 294 (1959).
- 2) 金子, 坂井, 池上, 山辺, 千田, 須崎 INS-TL-46 (1959).
- 3) 坂井, 質量分析, No. 14, 27 (1960).
- 4) I. Bergström, F. Brown, J. A. Davies, J. S. Geiger, R. L. Graham and R. Kelly, *Nucl. Instl. and Meth.*, **21**, 249 (1963).
- 5) 金子, 坂井, 池上, 山辺, 荒谷, 千田, 須崎 INS-TL-56 (1961).
- 6) O. Almén and G. Bruce, *Nucl. Instl. and Meth.*, **11**, 279 (1961).
- 7) P. K. Role, J. M. Fluit and J. Kistemaker, *Physica*, **26**, 1000 (1960).

- 8) G. D. Magnuson and C.E. Carlston, *J. Appl. Phys.*, **34**, 3267 (1963).
Physica **26**, 1009 (1960).
- 10) E. B. Henschke. *Phys. Rev.*, **106**, 737 (1957).
- 9) P. K. Role, J. M. Fluit and J. Kistemaker,