

5.2 重イオン衝撃による内殻電離——特に、K殻電離における入射粒子の電荷依存性について

九州大学工学部 俵 博 之
(福岡市箱崎町)

Innershell Ionization by Heavy Ion Impact
-Dependence of K-shell ionization on the projectile charge

Hiroyuki TAWARA
(Nuclear Engineering Department,
Kyushu University, Fukuoka)

It is shown that the K X-ray production cross sections in low energy heavy ion impact are strongly dependent on the ionic charge of a projectile and the number of vacancy in the 2p shell, but not on the nuclear charge, as expected from the electron promotion model. Meanwhile, at high energies the K X-ray production cross sections are strongly dependent on both the projectile ionic and nuclear charge, which is not predicted by the simple Coulomb interaction mechanism.

1. はじめに

イオン衝撃による内殻電離現象は、Chadwick の頃から研究されているが、最近重イオン加速器の出現で、重イオン衝撃による内殻電離の研究に新たな興味がよびおこされつつある¹⁾。

プロトンのような軽いイオンとの衝突による内殻電離は、クーロン作用によると考えられ、理論的にはボルン近似 (PWBA) あるいはインパルス近似 (BEA) で記述され、内殻電離断面積 σ_1 は、入射粒子の核電荷 Z_1 の2乗に比例する： $\sigma_1 \propto Z_1^2$ (1)

一方、重イオン衝突による内殻電離機構は、軽イオンのそれとくらべて本質的に異なり、その電離断面積は、低エネルギーでは、プロトンにくらべ $10^3 \sim 10^6$ 倍大きい²⁾。

内殻電離がおこると、結果として、電子を放出するオージェ過程あるいはX線を放出する放射過程がおこる。X線放出がおこる確率は、蛍光収量 ω といわれ、次のように定義されている：

$$\omega = \sigma_x / \sigma_1, \quad \sigma_1 = \sigma_A + \sigma_x \quad (2)$$

ここで、 σ_A 、 σ_x はオージェ電子、X線放出の断面積である。従って、オージェ電子あるいはX線を測定することによって、内殻電離についての情報がえられる。

ここでは、K殻電離の入射粒子のイオン電荷 (ionic charge) あるいは核電荷 (nuclear charge) 依存性についてのべ、固体ターゲットでは複雑な過程がおこるので、より基本的なデータを得るには、ガスターゲットでの実験が有用なことを強調する。

2. 低エネルギー重イオン衝撃

低エネルギー重イオン衝撃による内殻電離現象は、Fano-Lichten によって提案された electron promotion モデル³⁾ で定性的に説明される。すなわち、入射粒子がターゲット原子に充分近づく

両者は短寿命の準分子 quasi-molecule を形成し、その分子軌道 (MO) 間でのエネルギー準位交叉によって、内殻電子が空席のある外殻へ昇位 (promotion) し、その結果、内殻に空席が発生し、電離がおこる。Ne イオンが Ne ターゲットに衝突する対称衝突による Ne K 殻電離を例にとる。

Fig. 1 に Ne-Ne 系のエネルギー準位図を示す。入射 Ne イオンが、ターゲット Ne 原子に近づくとき K 殻電子は $2p\sigma$ MO にそって移動し、両者が充分接近すると準分子 (Ne)₂ すなわち Ca ($Z=20$) が形成される。衝突後両者が分離する時、 $2p\sigma$ MO にいた電子の一部は $2p\pi$ MO に沿って上昇し、完全に分離した後では、 $2p$ 殻に移動する。従って、Ne の K 殻には空席が発生し、そこへ外殻電子がおちこみ X 線あるいはオージェ電子が放出される。

2.1 ガスターゲットでの実験

Fig. 1 と上述の説明からわかるように、K 殻電離においては衝突前の $2p\pi$ MO の空席数が電離確率に大きな影響をもつ。Fig. 2 に、 Ne^+ 、 $Ne^{++} + Ne$ 衝突による X 線放出断面積を示す。⁴⁾ ここで入射 Ne イオンはターゲット Ne と 1 回だけ衝突するように、ガス圧を充分ひくくしてあり (single collision)、入射 Ne イオンの荷電変換の影響はほとんどない。 Ne^{++} (2 個) イオン衝突による Ne KX 線強度を比較すると、予想されるように、 Ne^{++} のそれは Ne^+ の約 2 倍になっている。すなわち、重イオン衝突による K 殻電離は、入射粒子のイオン電荷に依存する。

さらに、Fig. 2 をみると、 σ_X と σ_A の入射粒子エネルギー依存性がことなっている。両者の比から、Ne K 殻の蛍光収量 ω_K が入射粒子のエネルギーの函数として得られ、Table 1 に示すように、300 keV Ne 衝突での Ne の ω_K は、50 keV のその約 2 倍に増大している。今まで考えられていたように ω_K は一定でなく、入射粒子のエネルギーに依存する。 ω_K の増加の原因は、主として内殻電離と同時に起こる外殻電離の影響と考えられる。⁵⁾ L 殻の ω の変化はさらに著しい (Table 1 参照)。

electron promotion モデルは Barat-Lichten により非対称衝突にも拡張され⁶⁾、数多くの実験事実を説明出来る。Fig. 3 に、いろいろな重イオンでガスターゲットを衝撃した時の CKX 線放出断面積 σ_X を示す。⁷⁾ $C^+ \rightarrow C$ 、 $N^+ \rightarrow C$ 、 $C^+ \rightarrow N$ 、 $Ne^+ \rightarrow C$ 、 $C^+ \rightarrow Ne$ 衝突における $2p\pi$ MO の最大空席数は、それぞれ、4, 4, 3, 1, 0 で、 σ_X もこの順序で減少している ($C^+ \rightarrow Ne$ については文献参照)。この結果はグラフアイトターゲットを用いた同種の実験とも定性的に一致する。さらに、非弾性エネルギー損失の実験でも、 $2p$ 殻の空席があるときにのみ、K 殻電離がおこることが示された。⁹⁾

以上のことから、低エネルギー重イオン衝撃による K 殻電離において、1) 入射粒子の核電荷はあまり重要でない、2) σ_1 は衝突前の $2p\pi$ MO の空席数につよく依存する、3) σ_1 は入射粒子のイオン電荷に依存する、4) ω_K は一定でなく、入射粒子のエネルギーで変化する、などプロトン衝撃にくらべ大きな差違がみられる。

2.2 固体ターゲットでの実験

これまで行なわれた内殻電離の研究では、主に X 線が測定され、しかも厚い固体ターゲットが用いられていた。この場合、いわゆる solid state effect のため、非常に複雑な過程がおこる。充分厚い固体ターゲットから発生する X 線量 Y は次のように表わされる。¹⁰⁾

$$Y(R_0) = n \int_0^{R_0} \exp[-\mu(R_0 - \tau)] \sigma_X(E(\tau)) d\tau \quad (3)$$

これを微分することによって X 線発生断面積 σ_X がもとめられる：

$$\sigma_X = S(E) \frac{dY}{dE} + \frac{\mu}{n} Y \quad (4)$$

ここで、 n : ターゲット原子数、 R_0 : 入射イオンの飛程、 $E(r)$: 残留飛程 r のイオンのエネルギー、 μ : ターゲットの X 線吸収係数、 $S(d)$: 阻止断面積である。(2)と(4)式から、電離断面積 σ_I がもとまる。(4)式が成立するには、1) ω が一定である、2) σ_I がイオン電荷によらない、3) イオンは単一電荷である、4) イオンの行路が直線であるなどの条件が必要である。もともと(3)式はプロトンのような軽いイオン衝突に対して導かれたもので、重イオン衝突では、上記条件がみたされない場合が多い。ガスターゲットでの単一衝突にくらべ、固体ターゲットでは連続多重衝突がおこるので、重イオン-固体ターゲットでの実験では次のような複雑な過程がおこる：

1. 入射粒子のターゲット内での電荷は単一でなく、ある分布を示す。その分布は粒子のエネルギーに関係し、固体内での分布はよくわかっていない。
 2. 連続多重衝突による外殻電子損失 electron stripping あるいは励起のため、入射粒子の 2p 殻の空席が増大する。
 3. 電子損失のため、内殻電子の結合エネルギーが増大し、入射粒子とターゲット原子の内殻のエネルギー単位の入れ替え (Swapping) がおこる。
 4. ω は一定でなく、入射粒子エネルギーに依存する。
 5. σ_I , σ_X は入射粒子のイオン電荷に依存する。
 6. 入射粒子のエネルギーゆらぎが大きい。
 7. 入射粒子の通路は直線でなく、ガタガタしている。
 8. 反跳効果が大きい。Ne⁺ → C (グラファイト) 衝突の場合、Ne⁺ イオンに反跳された炭素原子 C^{*} は他の C と衝突する。C^{*} → C 衝突はいわゆる対称衝突で、反応断面積が大きい。しかも、多くの場合、C^{*} は高い電離あるいは励起状態にある。
 9. 入射粒子、ターゲット原子のいずれの X 線にも属さない非特性 X 線が発生する場合がある。¹¹⁾
- (4)式を用いて出した σ_X は、入射粒子の固体内での未知のイオン電荷についての平均であり、えられる σ_X は入射粒子のイオン電荷に無関係である。上記のことから、(3)式は、大ざっぱに次のように修正されねばならないだろう：

$$Y(R_0) = n \sum_i \int_0^{R_0} \exp[-\mu(R_0-r)] \cdot \omega[E(r)] \cdot F_i[E(r)] \cdot \sigma_I[i\{E(r)\}] dr \quad (5)$$

ここで F_i はイオン電荷 i の全体に対する割合で、 $\sum_i F_i = 1$ である。これから、 σ_I をきめるには、固体内でのイオン電荷分布、いろいろな電離励起状態に対する ω を前もって知る必要がある。

6.7.8) については、Taulbjerg-Sigmand¹²⁾ が理論的に検討し、特に、8) は低エネルギーで大きく、場合によっては σ_X が見かけ上、一桁も大きくなることもある。Kr⁺, Ne⁺, N⁺, C⁺ → C 衝突において、グラファイト(固体)とメタンガスターゲットとの σ_X をくらべると、前者が上記固体効果のため、一般的に後者より大きいことも実験的に確認された。⁷⁾

このような点を考えると、固体ターゲットを用いた測定結果から、基本的な内殻電離のデータを導き出すことはかなり困難であろう。

3. 高エネルギー重イオン衝撃

重イオン衝撃においても、エネルギーが充分たかくなると上記の electron promotion モデルは成立しなくなり、内殻電離はクーロン作用が支配的になると考えられ、プロトン衝撃でえられた結果を説明するために用いられている PWBA あるいは BEA 理論を用いて、 σ_I を計算出来るはずであ

る。しかし、重イオン衝突においては、内殻電離と同時に起こる外殻電離が大きい影響をおよぼすので、プロトンの場合とことなつた内殻電離機構があるにちがいない。

3.1 入射粒子のイオン電荷依存性

Fig.4に80 MeV Ar イオンでNe ガスタージェットを衝撃した際発生するAr-K, Ne-K X線強度を、入射Arのイオン電荷の函数として示す。¹³⁾ Si(Li)検出器ではかつたNe-K X線スペクトルは、Ar-K X線のそれより巾が広くいろいろな外殻電離をとともなうK殻電離にもとづく数多くのX線よりなっていることを示している。Ne-K X線強度は、入射Arのイオン電荷とともにほぼ指数的に増大し、Ar¹⁷⁺ 衝撃の場合のX線強度はAr⁶⁺のその約60倍も大きくなる。一方、Ar-K X線強度は入射Arイオンが完全電離に近づくにつれ急激に増大し、Ar¹⁷⁺ 衝撃のAr-K X線量はAr⁶⁺のその数100倍にも達する。この増加の原因のひとつとして、外殻電離による ω の増大があげられる。Neの場合、K殻電子1個が電離された通常のK殻電離の ω_K は0.018であるが、外殻電子がほとんどなくなった時の ω_K は1に近い。すなわち、観測されたNe-K X線の増加の一部は、 ω_K の増大に関係しているといえる。一方、Ar-K X線の場合、 ω_K はそれぞれ0.122, 1で ω_K も増大しているが測定結果を説明するには十分でない。この急激なAr-K X線の増加は、ターゲット原子からの電子捕かき(electron capture)も寄与していると考えられる。すなわち、完全電離に近いArイオンには、すでにK殻空席が存在しているが、Arイオン自身に外殻電子がないため、この空席は崩壊することが出来ない。¹⁴⁾ そのイオンの内殻空席へ、直接あるいは外殻をへてターゲットの電子を捕かきすることによって、イオンはX線を放出することが出来る。事実、電子捕かき過程の断面積は一般にK殻電離断面積にくらべ一桁以上大きい。この荷電変換をとともなう内殻電離がおこると、Ne-K X線強度も増大するはずで、観測された結果はこのことを裏書きしている。

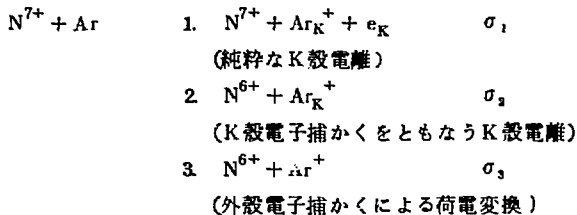
3.2 完全電離重イオンの核電荷依存性

完全電離状態のC⁶⁺, N⁷⁺, O⁸⁺, F⁹⁺ イオンでArガスを衝撃した時のAr-K X線量を、入射粒子の速度の函数として、Fig.5に示す。¹⁵⁾ もし、クーロン作用が主であれば、(1)式が示すように、Ar-K X線量は入射粒子の核電荷 Z_1 の2乗で増大するはずである。Fig.5の縦軸は、プロトンに対する比として表わされており、この比はPWBAおよびBEA理論によると1である。しかし、入射粒子の核電荷が大きくなるにつれ、比は1から大きくずれてくる。この場合も、 ω の増大が考えられるが、完全電離入射イオンによるターゲット原子からの直接K殻電子捕かきが大きく寄与しているように思われる。

高エネルギーの完全電離あるいはそれに近い電離状態の重イオン衝突における内殻電離には、直接内殻電離の他に、ターゲット原子の内殻電子捕かきをとともなう内殻電離が重大な役割をはたしていると考えられる。

3.3 実験の提案

内殻電離における上記2つの過程の寄与をしらべるために、次のような実験を行うのは興味があるろう。N⁷⁺ + Ar 衝突を例にとると、次の3つの過程がおこる(K殻に関係したもののみ)：



上述のX線測定においては、 $\sigma_1 + \sigma_2$ が観測され、一方、 $\sigma_2 + \sigma_3$ は通常の荷電変換の実験で測定されているので、Fig.6のように、X線-荷電変換イオンの同時計数実験で、 σ_2 すなわち、K殻電離における電子捕かく過程の寄与を知ることが出来る。

この種の実験はガスターゲットで単一衝突条件のもとで行うべきである。

4. おわりに

現状で、重イオン衝突による内殻電離について定量的な議論をするには、あまりにも実験データが少ない。内殻電離に関してより基本的なデータを得るには、固体ターゲットよりも（勿論、固体ターゲットを用いた興味深い実験も多い）、ガスターゲットを用いて単一衝突条件で各種の粒子ターゲットの組合せで、上記のような実験を行うとともに、下記の測定は、内殻電離機構を理解する上で有用と思われる。

1. 高分解能結晶スペクトロメーターなどで、X線スペクトルを測定し、同時多重外殻電離状態をしらべる。
2. オージェ電子とX線両者を測定し、いろいろな電子配置に対する ω を決定する。
3. 電子捕かくをともなう内殻電離過程の寄与を定量的にしらべる。

一方、理論面では、electron promotion モデルにもとづいて低エネルギーでの対称衝突におけるK殻電離に関しては、一応の目安がつけられたが、非対称衝突¹⁷⁾に関してはまだ検討されていない。高エネルギーでは、直接K殻電離と、電子捕かくをともなうK殻電離とをBEA理論にもとづいての計算が試みられている。しかし、系統的な理論はまだ出ていない。

原子核実験にはエネルギーが低すぎる重イオン加速器でも、この分野ではまだまだ新しい興味あるデータが得られる可能性が多い。

References

- (1) Proc. Intern. Conf. Innershell Ionization Phenomena, Conf. 72040 (USAEC, Oak Ridge, Tennessee, 1973)
- (2) Garcia J. D., Fortner R. J., Kavanagh T. M.: Rev. mod. Phys., 45, 111 (1973)
- (3) Fano U., Lichten W.: Phys. Rev. Letters, 14, 627 (1965)
- (4) Tawara H., Collin F., de Heer F. J.: Phys. Letters, 43A, 266 (1973)
- (5) Larkins F. P.: J. Phys., B4, L29 (1971)
- (6) Barat M., and Lichten W.: Phys. Rev., A6, 211 (1972)
- (7) Tawara H., de Heer F. J.: Physica (in printing)
- (8) Der R. C., Fortner R. J., Kavanagh T. M., Khan J. M.: Phys. Rev., A4, 556 (1971)
- (9) Fastrup B., Herman G., Kessel Q. C.: Phys. Rev. Letters, 27, 771 (1971)

- (10) Merzbacher E., Lewis H. W.: Handbuch der Physik (Springer, Berlin), 34, 166 (1958)
- (11) Saris F. W., van der Weg W. F., Tawara H., Laubert R.: Phys. Rev. Letters, 28, 717 (1972)
- (12) Taulbjerg K., Sigmund P.: Phys. Rev., A5, 1285 (1972)
- (13) Nowat J. R., Sellin J. A., Pegg D. J., Peterson R. S., Brown M. D., McDonald J. R.: Phys. Rev. Letters, 30, 1289 (1973)
- (14) Schnopper H. W., Betz H. D., Delvaille J. P., Kalata K., Sohval A. R., Jones K. W., Hegner H. E.: Phys. Rev. Letters, 24, 898 (1972)
- (15) McDonald J. R., Winters L. M., Brown M. D., Ellsworth L. D., Chiao T., Pettus E. W.: Phys. Rev. Letters, 30, 251 (1973)
- (16) Tonuma T., Korono I., Miyazawa Y., Yoshida F., Karasawa T., Takahashi T., Konno S.: J. Phys. Soc. Japan, 34, 148 (1973)
- (17) Briggs J. S., Macek J. H.: J. Phys., B5, 579 (1973); B6, 982 (1973) Watanabe T., Koike M., Minami F.: J. Phys. Soc. Japan, 34, 781 (1973)

Table 1 Fluorescence yields of Ne-K-shell and Ar L₂₃-shell.

$\omega_K(\text{Ne}) \times 10^{-2}$			
$\text{Ne}^+ \rightarrow \text{Ne}$		$e \rightarrow \text{Ne}^+$	理論
50 keV	2.0 ± 1.8	1.55	1.82
100	3.7 ± 1.9		
200	4.2 ± 2.1		
300	3.6 ± 1.8		
$\omega_{L_{23}}(\text{Ar}) \times 10^{-4}$			
$\text{Ar}^+ \rightarrow \text{Ar}$		$e \rightarrow \text{Ar}$	理論
50 keV	17.6	2.40	1.9
100	31.7		
150	72.9		
200	121		

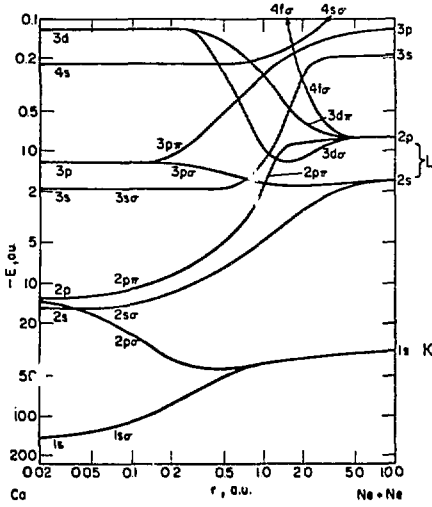


Fig. 1 Energy diagram for He-Ne system.

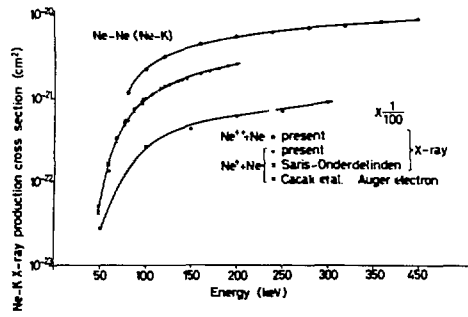


Fig. 2 Ne-K X-ray production in Ne^+ and N^{++} ion impact on Ne^4 .

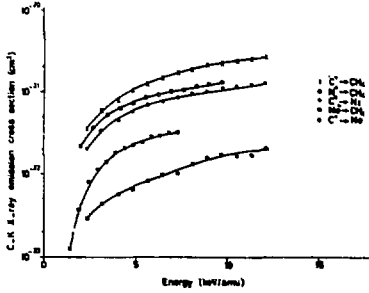


Fig. 3 C-K X-ray production in various collisions⁷⁾

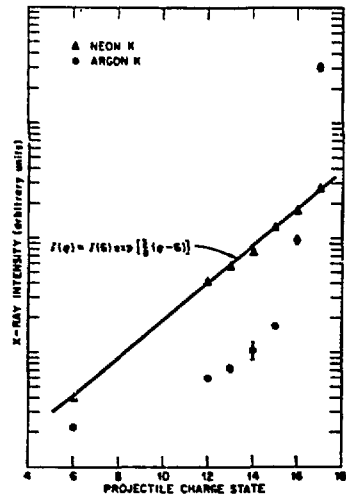


Fig. 4 Ne-K and Ar-K X-ray intensities as a function of the ionic charge of 80 MeV Ar incident on Ne^{13} .

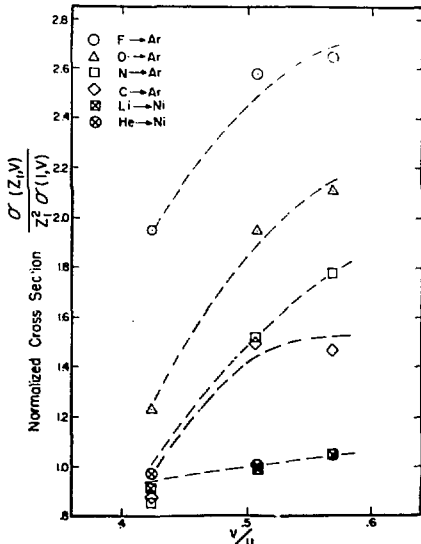


Fig. 5 Ratios of X-ray production in completely ionized heavy ion impacts to that in proton impact¹⁵⁾

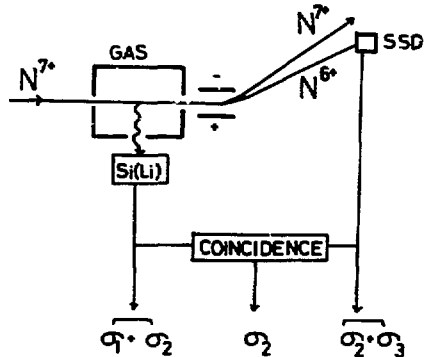


Fig. 6 A proposed experiment to check the contribution of the K-shell electron capture process to the K-shell ionization process.