

氏名・(本籍)	いし い けい ぞう 石 井 慶 造
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	理博第 467 号
学位授与年月日	昭和51年 3月25日
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程)原子核理学専攻
学位論文題目	Inner-Shell Ionization by Heavy Charged Particles (重荷電粒子による内殻電離)
論文審査委員	(主査) 教 授 森 田 右 教 授 北 垣 敏 男 助 教 授 小 山 田 正 幸

論 文 目 次

Part I. Excitation of Sn K- and L- and Ta L-shell
x rays by 14-44 MeV protons

Abstract

I. Introduction

II. Experimental procedure

III. Results and Discussion

A. Theoretical

B. Excitation curves

C. x-ray production ratios

IV. Summary

References

Figure captions

Part II. M-shell ionization of Au, Bi, and U by protons and helium ions
in the MeV region

Abstract

I. Introduction

II. Experiments and Results

III. Discussion

A. BEA

B. PWBA

C. Projectile charge dependence of ionization cross sections

IV. Summary

References

Figure captions

Part III. Bremsstrahlung induced by proton and ^3He -ion bombardments in the
1-4 MeV/amu energy range

Abstract

I. Introduction

II. Experiment and Results

III. Theoretical

A. Bremsstrahlung from Secondary Electrons

B. Bremsstrahlung from Projectile

IV. Comparison with experimental results and discussion

V. Summary

References

Figure captions

Acknowledgements

論文内容要旨

概 略；

原子を重荷電粒子で衝撃すると、特性X線及びAuger電子が発生する。このことは、古くから知られており、1912年Chadwickが自然放射性物質からの α 粒子を物質にあてると、その物質の特性X線が発生することを報告している。しかしながら、この重荷電粒子による特性X線の発生機構は、ここ数年前まで組織的な研究が行われていなかったため、ほとんど解明されていなかった。現在では加速器がこの方面に使用され始め、又高分解能、高能率のX線分析用半導体検出器の発達によって、盛んに研究されている。

この重荷電粒子による内殻電離機構は、入射粒子が重荷電粒子であるため、電子による内殻電離とは異なる点が多い。例えば、重荷電粒子と原子との電荷移行による内殻電離、又は電子では、ほとんど無視できる多重内殻電離等の効果がある。さらに、重イオンになると構造を持つため、多くの新しい現象が発見されている。

重荷電粒子による内殻電離は、重荷電粒子と内殻電子とのクーロン相互作用によって生じる。電離によって、原子から電子が放出される。従って重荷電粒子による内殻電離は以下のX線、電子、重荷電粒子を観測することによって研究される。すなわち、

1. K-, L-, M-……, -X線, 又はそのAuger電子
2. 内殻電離によって発生した放出電子, 又はその制動放射X線
3. 内殻電離によって、エネルギーを損失した重荷電粒子

我々は、東北大学5-MVバンデグラフ加速器を用いて、重荷電粒子による内殻電離をX線測定によって研究した。この実験には、X線測定器以外は、ほとんど従来の原子核実験装置を、そのまま使用できた。

この論文では、Part I ではK, L-殻電離について、Part II では、M-殻電離について、内殻電離断面積と理論との比較を論じ、Part III では、電子放出断面積について論ずる。

Part I. 1.4 - 4.4 MeV陽子によるSn K, L-及びTa -L殻X線の励起

重荷電粒子による内殻電離は、重荷電粒子と内殻電子とのクーロン相互作用によって生じる。この内殻電離断面積は、主に以下の物理量に依存する。

- 内殻電子の量子数及び電離エネルギー
- 入射粒子の速度及び荷電数

しかし、内殻電離断面積は、これらの量だけでは、当然説明出来ず、様々な効果が断面積に影響すると考えられる。我々は、これらの量だけを考慮した理論と実験とを比較することによって、電離断面積に対するこれらの量の依存性、及び内殻電離における種々の効果を見出した。

従来の実験は、入射エネルギーが1 MeV 以下で行われていたこと、更に thick target

からの内殻電離断面積しか得られなかったことにより、内殻電離における種々の効果等を導き出すことが不可能であった。そこで我々は、東北大学5-MVバンデグラフ加速器を用いて、thin targetによる実験を行った。X線検出器として、ORTEC社製高分解能Si(Li)検出器($\Delta E=205\text{eV}$ at 5.9keV)が用いられた。この実験で、主に問題になる点はwindow等によるX線吸収、検出分解能、ビームの散乱等によるバックグラウンド、X線検出器の検出効率等である。ビームの散乱等によるバックグラウンドはChamber内に炭素を塗装することによって、落すことが出来た。上記のその他の問題点は、別個に実験が行われた。

このPartでは、1.4-4.4 MeV陽子の衝撃によって、Sn K-X線、L-X線、及びTa L-X線の励起函数を求め、現存の理論がどの程度、内殻電離を説明できるか、及び内殻電離における相対論効果、入射荷電粒子による多重内殻電離の効果等について議論する。

理論としては、Merzbacher等によるplane-wave-Born approximation (PWBA)¹、入射粒子と内殻電子とのRutherford散乱から求めたGarciaによるbinary-encounter approximation (BEA)²、及び入射荷電粒子を時間依存相互作用としてとらえたBangとHansteenによるsemiclassical approximation (SCA)³が用いられた。

BEA理論によると、内殻電離断面積 σ_i は次式によって与えられ、 $U^2\sigma_i/Z_1^2$ は $E_1/\lambda U$ だけに依存する。

($U^2\sigma_i/Z_1^2 = f(E_1/\lambda U)$) U : 電離エネルギー Z_1 : 入射粒子の電荷

E_1 : 入射粒子のエネルギー λ : 入射粒子と電子の質量比)

この理論は、軽い元素のK殻電離断面積に対しては、かなりよく成り立つことが、今までの実験結果から分っている。この法則は、scaling lawとよばれ、内殻電離を議論する場合、基準変数として $E/\lambda U$ を用いれば良いことを示している。さらに、Garciaの古典的考察によると $U^2\sigma_i/Z_1^2$ は、殻の量子数に依存しない。我々のSn-K, L, Ta-L殻の実験結果は量子数の依存性を示した。

原子番号Zが大きくなると、内殻電子に相対論効果が効いてくる。 $E/\lambda U = 0.03 \sim 0.1$ の領域では、軽い元素のK内殻電離断面積は、BEA, PWBAと良く一致する。しかし、我々の測定したSn ($Z=50$) K殻に対しては、BEAは良い一致を示さなかった。一方、PWBAは実験値と良く一致した。しかしながら、この一致は、内殻電子の相対論効果と、入射粒子のクーロン相互作用による軌道偏向の効果の相殺によることが、PWBAに、これらの効果を補正することによって明らかにされた。一方、Sn-L, Ta-L殻に対して、 $E/\lambda U = 0.1 \sim 0.7$ の領域では、BEA, PWBA共に実験値と良い一致を示した。この領域におけるクーロン偏向の効果は無視できるが、相対論効果は、無視できない。しかし、PWBAにこの効果を補正すると、Ta-

L殻に於いては、実験との差が大きくなる。この結果は、相対論的内殻電子波動函数を用いたPWBA計算の必要性を指摘している。⁴又、この領域においては、SCAは実験との一致が悪いため、SCAの様な取り扱いは良い近似を与えないと思われる。

更に、LX一線発生断面積から、原子の電離状態に対する情報が得られる。我々の実験においては、Ta, Sn, LX一線の部分断面積の比は、入射エネルギー依存性を持つことがわかった。この結果は入射荷電粒子による多重内殻電離の効果によるものと考えられる。

以上の一連の結果から、我々はK, L内殻電離をある程度説明出来た。しかしそれと同時に問題点が指摘された。この問題点に対しては、更に系統的な実験と理論の発展が必要とされる。

Part II. MeV領域における陽子、ヘリウムイオンによるAu, Bi, UのM殻電離

Part I で問題になった、電離断面積の殻依存、及び入射粒子の電荷依存等についてこのPartでは議論する。

我々は、1.0 - 4.5 MeV 陽子と 3.0 - 9.0 MeV, ³He イオンをAu, Bi, U target に衝撃させて、M-X線を測定した。M-X線測定は、X線のエネルギーが低いことより、window等の吸収を正確に測定する必要がある。現在まで、M殻電離の実験はほとんど行われていない。この理由として、M-X線の複雑な構造、fluorescence yield 及びCoster-Kronig係数が良くわかっていないことがあげられる。しかし我々は、簡単な近似を用いることによって、X線発生断面積から、内殻電離断面積を求めて、理論と比較した。この近似は、M-X線が主に、3d殻電離によるものと、考えれば妥当な取扱いである。

Garcia の古典的考察とは、内殻電子の速度分布を古典的に取扱ったことで、これにより、 $U^2 \sigma_i / Z_1^2$ の非殻依存が導き出される。我々は、水素様波動函数の速度表示から得られる速度分布を用いて、BEAを改善した。改善されたBEAによると、1S, 2P, 3d殻電離断面積は、 $E / \lambda U > 0.25$ 以上では、次の関係を持ち、更に $E / \lambda U \approx 0.25$ で交差する。

$$(U_{1s}^2 \sigma_{1s}^2 / N_{1s} Z_1^2 > U_{2p}^2 \sigma_{2p}^2 / N_{2p} Z_1^2 > U_{3d}^2 \sigma_{3d}^2 / N_{3d} Z_1^2 \quad N: \text{電子数})$$

我々の実験結果は、この結果と良く一致し、更に、内殻電離の最大値を与える $E / \lambda U$ も殻依存を持つことが、理論、実験によって示された。このことは、実験精度の悪さ、及びM殻電離の実験がほとんどなされていなかった為に明確にされていなかったことである。

又、Au等においては、Zが大きいためM殻においても相対論的效果が効き、その程度は、Sn-K, L殻のそれと同程度である。 $E / \lambda U = 0.3 \sim 1.0$ 領域の実験結果はChoiによって計算された相対論的效果の補正を考慮したPWBA計算⁵に、更に、クーロン偏向の効果も補正した計算と良い一致を与えた。

PWBA, BEAともに、入射粒子の速度が等しいならば、内殻電離断面積は Z_1^2 に比例する。しかし、Brand, 俵等のK, L殻電離についての実験結果は、 Z_1^2 依存から大きくずれることを示し、あるエネルギーに於いて、断面積の比 $Z_2^2 \sigma_1^X / Z_1^2 \sigma_2^X$ ($Z_2 > Z_1$) は、1より大きく

なることが報告されている。この Z_1 依存性は crossover behavior と呼ばれている。今回の実験で、M殻電離に於いても crossover behavior が見出された。この現象に対して様々な議論がなされているが、未だ解明されていない。

Part III. エネルギー範囲 1 ~ 4 MeV/amu における陽子、ヘリウムイオン衝撃による制動輻射

Part I, II において、内殻電離は特性 X 線測定の情報によって議論された。この場合、電離断面積は内殻から電離された 2 次電子の積分によって求められる。従って、この電子放出断面積を調べることによって、更に内殻電離について詳しい情報が得られる。この目的のために我々は Al からの重荷電粒子衝撃による連続 X 線を検出して、その結果を放出電子による制動輻射 X 線発生の理論と比較した。理論としては、軽い元素に於いて良く一致している BEA を用い、計算には K, L, M 殻電離断面積を必要とするため、Part II で与えられた速度分布を用いた。更に Al 中の放出電子のエネルギー損失に対しては Bethe の理論を用い、制動輻射断面積に対しては、我々の測定した X 線エネルギー範囲を考慮して、古典近似の Jackson の理論を用いた。

我々の BEA 計算によると、放出電子スペクトルは内殻電子の平均速度に強く依存する。この電子放出断面積を用いて連続 X 線スペクトルを計算した結果、内外殻電子の遮蔽効果を見捨てて求めたスペクトルが実験と良く一致した。このことは、我々の測定したエネルギー範囲が 2 keV ~ 7 keV であることであり、放出電子の中、比較的高速の電子によるものであることを考えれば理解できる。つまり高速の電子は原子核近傍の電子によるものである。しかしながら高エネルギー側では、理論値は、実験値を下まわるため、BEA 理論の不十分さが指摘される。更に、この実験結果では、 Z_1^2 - 依存が示された。従って Z_1 - 依存からのずれは、低エネルギーの放出電子に現われると考えられる。

この種の実験は、Folkman⁶と我々しか報告していない。Folkman 等は放出電子の角分布の無視等の荒い近似を行い、主に連続 X 線スペクトルの形状について議論している。我々の計算は絶対値も良く一致した。更に、我々の 2 次電子の多重散乱による等方位化を無視した計算によれば、この制動輻射 X 線は角度依存を持つことが期待される。これに対し実験結果は角度依存性を示し、理論と定性的に一致した。現在まで多重散乱による 2 次電子の等方位化によって連続 X 線も等方位的であると考えられていたのに対して、新しい事実を見出すことができた。

この様に放出電子による制動輻射 X 線を測定することによって、原子核近傍の電子の電離に対する情報が得られた。更に、我々の結果によれば、バックグラウンド (制動輻射) の角分布を考慮することによって、応用面でも微量元素分析の検出限界を上げることを可能にした。

Part I, Published in Physical Review A 10(1974)774-780

Part II, Published in Physical Review A 11(1975)119-124

Part III, Published in Physical Review A 13(1976)131-138

References

- (1) E. Merzbacher and H.W. Lewis, Encyclopedia of Physics, edited by S. Flügge (Springer-Verlag, Berlin, 1958), Vol. 34, p. 166.
- (2) J.D. Garcia, Phys. Rev. A1, 280 (1970); Phys. Rev. A1, 1420 (1970).
- (3) J. Bang and J.M. Hansteen, Mat. Fys. Medd. Dan Vid. Selsk. 31, No. 13 (1959)
- (4) B.H. Choi, Phys. Rev. A4, 1002 (1973).
- (5) B.H. Choi, Phys. Rev. A7, 2056 (1973).
- (6) F. Folkman, C. Gaarde, T. Huus, and K. Kemp. Nucl. Instrum. Methods 116, 487 (1974).

論文審査の結果の要旨

石井慶造提出の論文は、5 MVバンデグラフ装置で陽子と ^3He 粒子を加速し、これを各種元素のターゲットにあてて発生する特性X線と連続X線を、Si(Li)検出器で分析して、内殻電離機構の測定を行い、理論的解析を行ったもので、3部よりなっている。

第1部では、SnとTaのうすいターゲットを用いて、そのK及びL X線の励起曲線を測定した。この実験結果を先づ従来の平面波近似(PWBA)理論、2元衝突近似理論(BEA)、半古典近似理論(SCA)と比較した結果、K殻電離に対しては、 $E/\lambda U = 0.03 - 0.1$ (E は入射粒子のエネルギー、 U は内殻電子の結合エネルギー、 $\lambda = 5.48 \times 10^{-4}$)の領域ではPWBA理論が最もよく実験結果と一致する。ところがこの一致は見かけ上のもので、内殻電子の相対論効果と、入射粒子のクーロン相互作用による軌道偏向の効果が相殺しあっていることが明らかにされた。L殻電離に対しては、 $E/\lambda U = 0.1 - 0.7$ の領域で、BEA、PWBA共に実験値と一致するが、この領域ではクーロン偏向の効果は無視できるが、相対論効果は無視できず、この補正を行うとTa-L殻での実験値との一致はかえってわるくなる。このことは内殻電子の相対論的波動関数を用いたPWBA計算の必要性を示している。一般にSCA計算は実験値との一致がわるい。

第2部は、Au, Bi, Uをターゲットにして、M-X線を測定したものである。従来、M殻電離の測定はほとんど行われていない。実験結果の励起曲線の傾斜が、従来のK殻、L殻に対するものと異なることが見出された。それで著者は、K, L, M殻に対する水素様波動関数の速度表示からえられる速度分布を用いて、BEA理論を改善した結果、励起曲線の殻依存性が見出され、その傾向が実験結果とよく一致することを見出した。また実験結果はChoiによって計算された相対論効果を考慮したPWBA計算にさらにクーロン偏向の効果を補正した計算とよい一致を示すことが明らかになった。さらに陽子と ^3He 粒子による電離断面積の比を求めた結果、理論値 Z_1^2 (Z_1 は入射粒子の荷電数)からずれて、crossover behaviorを示すことが明らかになった。このことは従来、K, L殻では見出されていたが、M殻でも見出されたのは始めてであり、今後の理論解明を待つ問題である。

第3部は、Alをターゲットにして発生する連続X線を測定し、これを分析したものである。入射ターゲット原子と衝突して内殻電離を行うと、放出された電子は、ターゲット物質を通過中に制動輻射を発生する。著者は内殻電離にBEA理論、制動輻射発生に古典近似のJackson理論を用いて、連続X線のスペクトルと断面積を計算して、実験結果とよい一致をえた。これは以前のFolkmanの計算を多くの点で精度を高めたもので、断面積の絶対値まで実験とよい一致がえられたばかりでなく、高速内殻電子の電離に対しては、なおBEA理論が不充分であること、また制動輻射X線に角度依存性のあることが見出された。特にこの連続X線の角度依存性の問題は準分子軌道X線の証明や、微量元素分析の検出限界に大きい問題と寄与を与えるものである。

以上第1部では、従来の理論と実験との一致が見かけ上のもので、理論の精密化の必要性を明らかにし、第2部では励起曲線の殻依存性を見出すと共に、M殻電離におけるcrossover behaviorを発見し、第3部では制動輻射の理論を精密化すると共に、その角度依存性を見出したもので、自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。

よって石井慶造提出の論文は、理学博士の学位論文として合格と認める。