

陽電子顕微鏡

Positron Microscopy

藤 浪 真 紀

Masanori Fujinami

^a 千葉大学大学院工学研究科

要 旨 陽電子は独特の空孔検出能や電子とは異なる散乱・回折挙動を示し、物性プローブとして有用である。線形加速器により発生した高強度陽電子源を利用し、陽電子ビームの輸送磁場からの切離しやNi単結晶薄膜を用いた輝度増強機構からなる陽電子マイクロビーム光学系を考案した。現在、その陽電子マイクロビームを用いて透過型陽電子顕微鏡および陽電子プローブマイクロアナライザーを開発している。

キーワード：陽電子、陽電子顕微鏡、マイクロビーム、原子空孔二次元分布

1. はじめに

電子の反粒子である陽電子は、フェルミ面計測や空孔型欠陥の高感度プローブとして利用され、近年では新たな最表面の結晶構造や化学組成プローブとしても注目されている¹⁾。固体中に入射した陽電子は百 ps 程度で電子と対消滅し、その際に 511 keV の γ 線を 2 本反平行方向に放出する。消滅するまでの時間（陽電子寿命）や消滅 γ 線の放出角度から空孔型欠陥のサイズ・量・化学状態の評価や物質のフェルミ面測定ができる。また、陽電子は表面に局在化するという性質と回折・散乱挙動の電子との差異から同じ原理の電子利用手法と比較して高い表面選択性が実証されている。そのような特徴を持つ陽電子を微小領域の分析に適用するためにはそのマイクロビーム化が必要である。問題は陽電子源の輝度が電子銃と比較して $1/10^{16}$ 程度と非常に低いことであり、陽電子ビームをマイクロビーム化するには一次陽電子強度の向上および輝度を増強させる光学系の開発が不可欠である²⁾。筆者らは、放射性同位元素 (RI) と比較して 2~3 桁強度が高い線形加速器ベースの陽電子源を利用し、それに適合するマイクロビーム光学系を考案することにより、透過型陽電子顕微鏡 (Transmission positron microscope, TPM) および陽電子プローブマイクロアナライザー (Positron probe microanalyzer, PPMA) を開発している。

^a 〒 263-8522 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33

TEL/FAX: 043-290-3503

E-mail: fujinami@faculty.chiba-u.jp

2008 年 8 月 11 日受付

2. 陽電子マイクロビーム形成法

2.1 陽電子の単色化と磁場からの切離し

陽電子の発生は RI 以外にも電子線形加速器を利用してより高強度の陽電子を発生させることができる。数十 MeV に加速された電子が Ta のターゲットに照射されると制動放射 X 線が発生し、それによる電子対生成が起こり白色陽電子が生成する。その白色陽電子をそのまま静電系レンズで集束しても効率が非常に悪く、あらかじめ単色化する必要がある。その単色化には陽電子特有の負の仕事関数という性質を利用する。図 1 に陽電子の表面でのポテンシャルを示した³⁾。表面での双極子障壁の符号が電子と逆で負となるため、W や Ni などある種の物質に対して負の仕事関数となる。従って、白色の陽電子がいったん固体に入射すると一部の陽電子は表面に拡散し、法線方向に自然と再放出する。再放出した陽電子のエネルギーは仕事関数の絶対値 (W では 3 eV, Ni では 1 eV) であり、その広がり熱エネルギー程度の数十 meV と単色性に優れている。固体中の欠陥を除去し、表面を清浄化すれば 10^{-4} 程度の効率が得られる。電子対生成により発生した白色陽電子は W の薄板 (減速材とよぶ) に照射されると単色化された陽電子が再放出され、それを陽電子ビームとして利用できる。産業技術総合研究所 (以下、産総研と略す) や高エネルギー加速器研究機構 (以下、高エネ研と略す) の低速陽電子実験施設ではこの方法により 10^7 e⁺/s オーダーの強度、約 10 mm 径の陽電子ビームが得られている^{4,5)}。

陽電子源周辺は放射線量が高いため、数十 m 離れた測定室まで陽電子を輸送しなければならない。その輸送には効率の高い静磁場輸送方式を利用する。ビームラインの直線部には等間隔でヘルムホルツコイルを、曲線部はソレノイドコイルを設置し、均一に数十ガウスの磁場を発生させる。W 薄板の減速材から再放出された陽電子ビームは、磁場中をらせ

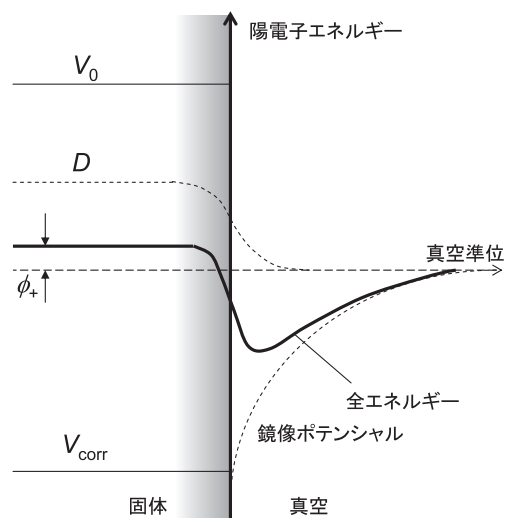


図 1 陽電子の表面でのポテンシャル。D: 表面双極子障壁, V_{corr} : 相関ポテンシャル, V_0 : 零点ポテンシャル, ϕ_+ : 陽電子仕事関数

ん運動しながら真空中を輸送される。一方で、磁場はマイクロビーム化には邪魔になるため、陽電子ビームを磁場から効率よく切離さなければならない。強度の損失を最小限にとどめ、同時に集束を実現するために図2に示した光学系を設計・開発した⁶⁾。

磁場に巻きついて輸送された陽電子は、磁場を遮断するとそのまま磁力線に従って発散してしまい、それを静電系レンズで集束するのは困難である。そこで、集束には磁界レンズを用い、その集束条件に合致するように陽電子ビーム軌道を調整することができれば磁場の切離しと集束が一挙に解決すると着想した。そこで最終の輸送用ヘルムホルツコイルと磁界レンズの間に磁場調整用引出コイルを配置した。引出コイルが発生する磁場を輸送磁場と逆向きにし、磁場強度を調整するとお互いの磁場が干渉し、磁界レンズの仮想焦点がビーム上流側に形成される条件を見出すことができることがわかった。本法において、磁界レンズの開口径を26 mmにした場合、80%以上の効率、1/10程度の縮小率で陽電子を集束することができた。

2.2 透過型輝度増強法

マイクロビーム化する際に考慮すべきは輝度である。輝度は保存され、径を小さくすれば発散角は大きくなり、後段のレンズに入射されない陽電子が増加し、強度の損失は大きくなる。陽電子の再放出現象を利用すると、この輝度保存則を克服することができる。減速材に集束して入射された一部の陽電子は、表面に対して法線方向に角度をそろえて再放出される。その際に集束時の大きな発散角はキャンセルされ輝度は向上する⁷⁾。先述の白色の陽電子を入射した場合の再放出効率は 10^{-4} と低いが、入射エネルギーが数 keV と単色化されていれば陽電子は表面近傍(100 nm 以下)で熱化することから、再放出の効率は10%以上と高くなる。従来輝度増強法は反射型の光学配置(入射陽電子と再放出陽電子が同じ面)が採用され、W や Ni の単結晶ブロックが再減速材として用いら

れていた。これは高温アニールを必要とする不純物や欠陥除去処理が容易であるため、高い効率を得られることが理由であるが、その光学系は複雑であった。本開発では磁場からの陽電子の引出しの際に用いた磁界レンズの焦点位置に金属薄膜の再減速材を設置し、入射面と反対側の裏面から再放出した陽電子を静電系に輸送する透過型配置を検討した。入射側は磁界レンズにより強集束でき、かつ放出側の静電光学系が簡素化されるというメリットである。

ここでは再減速材として Ni(100) 150 nm 厚の単結晶薄膜を選択した。W と比較して熱処理温度が低くてすみ、平坦な表面が得られやすいためである。内径 3 mm の Ni リングに Ni 薄膜を取り付け、水素気流中で 750°C で焼鈍することにより不純物や空孔を除去することができ、冷却する際の熱伝導率の違いによる膜の破損もその Ni リングの形状をくさび形にすることにより回避できることがわかった。また、 10^{-3} Pa の水素雰囲気中でフィラメントを加熱して生成する原子状水素を Ni 表面に照射することにより表面の酸化膜の除去がなされ、表面清浄化が達成できた。最適な陽電子の入射エネルギーは熱化に必要な厚さと裏面に拡散できる距離で決まる。膜厚が 150 nm であることからその注入分布と拡散距離を考慮すると、入射陽電子のエネルギーは約 5 keV で最大の効率を得られ、平均で 15% 以上の効率を得られた。薄膜再減速材から法線方向に再放出された陽電子は引出し電極、集束電極などで構成された静電レンズ系に導入され、その後以下の各実験目的に供される。

3. 透過型陽電子顕微鏡 (TPM)

TPM では電子と陽電子の電荷の符号の違いが透過像や回折像に現れるのかを実証することが最初の目的である。Mott 理論による散乱断面積の計算では両者で違いはない。透過像を得るためには透過型電子顕微鏡 (TEM) の結像系を利用することができ、そのクロスオーバーの位置に陽電子マイク

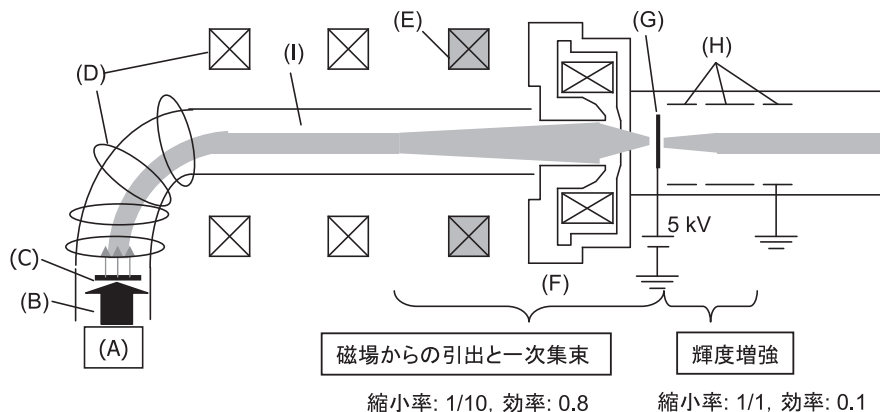


図2 陽電子マイクロビーム形成の概略図。(A) 加速器による高強度陽電子源、(B) 白色陽電子、(C) 減速材、(D) ヘルムホルツコイル、(E) 引出コイル、(F) 磁界レンズ、(G) 透過型再減速材 Ni(100) 150 nm 厚、(H) 静電レンズ、(I) 単色陽電子ビーム。減速材から再放出された単色陽電子ビームは真空チャンバー内で静磁場中輸送され、磁界レンズにより透過型薄膜再減速材に集束され照射される(磁場切離し)。その際、引出コイルにより磁界レンズの収束条件に合致するようにビームの発散が制御される。透過型薄膜再減速材から陽電子は法線方向に再放出され(輝度増強)、静電レンズ系に導入される。

ロビームを導入すればよい。そこで一次陽電子源を 35 kV まで昇圧できる高エネ研の低速陽電子実験施設を利用して TPM を構築した。

静磁場輸送された 35 kV の陽電子は先述の引出しコイルの電流調整および磁界レンズによる集束により磁場から切離される。焦点位置に設置した透過型再減速材 Ni 単結晶薄膜は 30 kV に昇圧されているため、陽電子は 5 kV で再減速材に入射されることになる。再放出した陽電子は静電レンズ、偏向電極などを経て 30 kV のエネルギーで TEM のクロスオーバー位置に導入される。ここでは電子銃も TEM の上部横に設置され、磁界プリズムを通して陽電子と同じクロスオーバーを形成できるような設計となっている。結像レンズを通過した透過陽電子や電子はマイクロチャネルプレート (MCP) やイメージングプレート (IP) 上で結像される。

図 3 は Cu メッシュ上に置かれた Au(100) 10 nm 厚試料における 30 kV の透過陽電子像と透過電子像である (MCP で測定)⁸⁾。結像レンズでは陽電子と電子は回転の向きが異なるが、両者はお互いに一定の角度で回転した像が得られていることから、この透過陽電子像には電子は含まれていないことがわかる。また陽電子回折像 (図 3 (d)) も取得できている。電子と陽電子の透過率の差については現在 IP を用いて定量的な評価を進めているところである。

4. 陽電子プローブマイクロアナライザー (PPMA)

固体に入射した陽電子は電子同様にエネルギーを失った熱化後に自己探索的に空孔型欠陥に捕獲される。結晶中の空孔型欠陥では電子密度が低いため陽電子寿命は長くなり、また運動量の小さい自由電子と消滅する確率が増加するため消滅 γ 線のスペクトルが先鋭化する。マイクロビーム化した陽電子を試料表面上で走査し、その寿命や消滅 γ 線のプロファイルの位置依存性を測定する方法を PPMA とよぶ。それにより原子空孔からサブナノ空隙の二次元分布計測が可能となる。また陽電子エネルギーを変化させれば、深さ方向の情報

も得ることができる。空間分解能は注入電子の固体内での広がりや拡散距離に依存し、原理的には μm オーダーとなる。

産総研の線形加速器を利用した高強度パルス化陽電子源を用いて、先述の方法によりマイクロビーム化された陽電子ビームを走査し、陽電子寿命の二次元分布計測をすることに成功している⁹⁾。非晶質 SiO_2 にイオンを照射し、マスクした非照射領域と比較した結果が図 4 である。非晶質 SiO_2 では入射した陽電子の約 80% がポジトロニウム (電子と陽電子の束縛状態) に変換されるので平均寿命は 1.04 ns 程度となるが、照射による欠陥形成によりその形成確率が減少するため平均寿命は 0.79 ns 程度と短くなる。その変化が明瞭に観測されている。 ^{22}Na のような RI を陽電子源にした場合測定に数日要していたものが、高強度陽電子源を利用することで 3 時間程度となり、測定時間の短縮化が実現できた。

一方で RI の ^{22}Na を陽電子発生源とした実験室レベルの陽電子ビームでもマイクロビームを形成し、対消滅 γ 線のドップラー広がり測定的位置依存性を測定する装置が開発されている。図 5 は双晶誘起塑性変形を示す鋼試料において 10% および 30% のひずみを与えたときの S パラメーターの二次元分布である¹⁰⁾。S パラメーターとは対消滅 γ 線スペクトルの中心 1.5 keV 領域の面積比と定義され、値が大きくなれば空孔量やそのサイズが大きくなることを示している。試料の断面積が同じ領域では均一に空孔が導入され、ひずみが不均一に加えられた領域では数百 μm の幅で急激に空孔挙動に変化が認められた。

5. おわりに

陽電子のマイクロプローブ形成技術の概略を解説し、TPM や PPMA の応用例を紹介した。電子と比較すると陽電子の方がもたらす情報の表面選択性が高く、他の手法では測定できない原子空孔検出といった特徴がある。問題は陽電子源の扱いの困難さと強度であった。今回の研究により、線形加速器の利用により陽電子源輝度の低さを補い、透過型再減

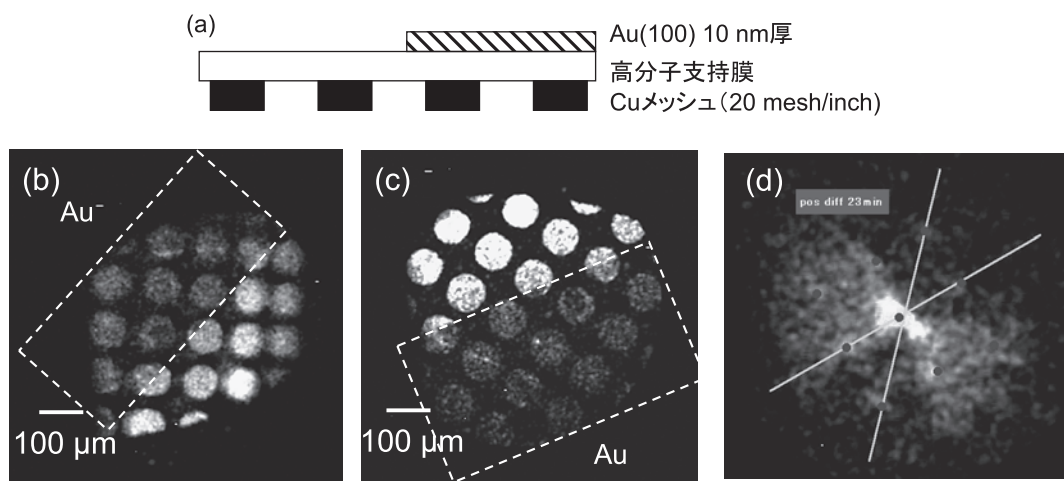


図 3 (a) Cu メッシュ上の Au(100) 単結晶 10 nm 厚の (b) 透過陽電子像と (c) 透過電子像, (d) 陽電子回折像. いずれも MCP で測定.

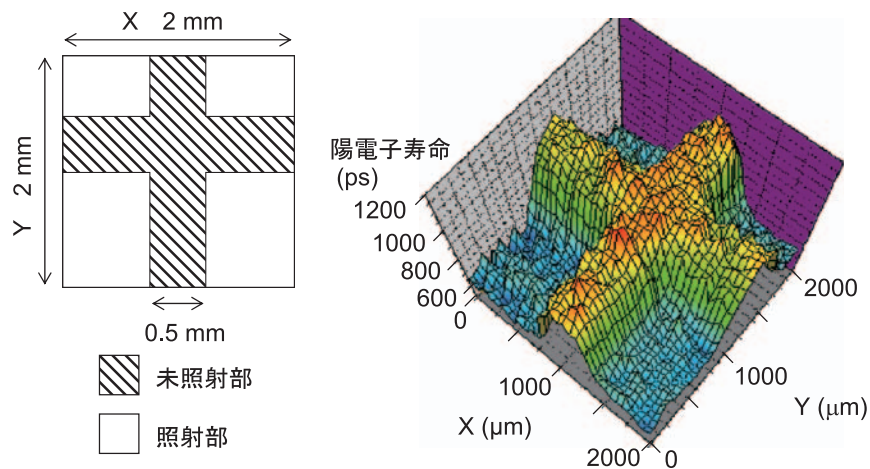


図4 N^+ イオン (75 keV , $3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$) を照射した非晶質 SiO_2 試料の PPMA による陽電子寿命の二次元分布. 照射領域 (白地部) では照射欠陥によりポジトロニウム形成が阻害され, 未照射領域 (斜線部) に比べて平均陽電子寿命が短くなる.

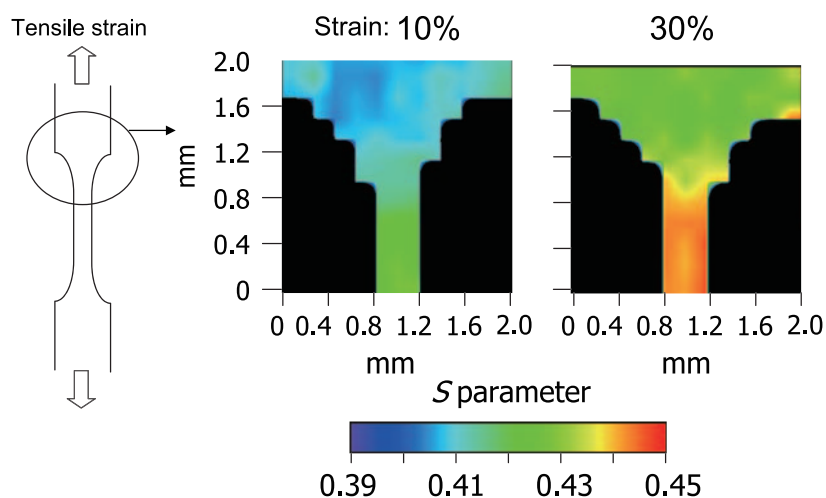


図5 塑性変形した鋼試料 (ひずみ量 10%と 30%) の PPMA による S パラメーターの二次元分布. 空孔量が多い, あるいは空孔サイズが大きいほど S パラメーターは大きくなる.

速材の利用による簡便な方法でのマイクロビーム形成技術を開発することができた. 今後, 陽電子マイクロビームによる物性研究に多くの方が興味を持っていただき, 研究が大きく発展すると確信している.

謝 辞

本研究は科学技術振興機構 先端計測分析技術・機器開発事業「透過型陽電子顕微鏡」によって行われ, 堂山昌男 (帝京科学大, 以下敬称略), 赤羽隆史 (物材機構), 松谷幸, 大塚岳志, 井上雅夫 (日本電子), 栗原俊一 (高エネ研), 鈴木良一, 大平俊行, 大島永康, 小林慶規 (産総研), 上殿明良 (筑波大), 神野智史, 岡壽崇 (千葉大院工) との共同研究である.

文 献

- 1) Coleman, P.G.: *Positron Beams and their Application*, World Scientific Publishing, Singapore, 2000
- 2) 藤浪真紀: ぶんせき, 169-176 (2008)
- 3) Schultz, P.J. and Lynn, K.G.: *Rev. Mod. Phys.*, **60**, 701-779 (1988)
- 4) Suzuki, R., Kobayashi, Y., Mikado, T., Ohgaki, H., Chiwaki, M., Yamazaki, T. and Tomimasu, T.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, L532-L534 (1991)
- 5) Kurihara, T., Nagashima, Y., Shidara, T., Nakajima, H., Ohsawa, S., Ikeda, M., Oogoe, T., Kakihara, K., Ogawa, Y., Shirakawa, A., Furukawa, K., Sanami, T. and Enomoto, A.: *Mater. Sci. Forum*, **445-446**, 486-488 (2004)
- 6) Fujinami, M., Jinno, S., Fukuzumi, M., Kawaguchi, T., Oguma, K. and Akahane, T.: *Anal. Sci.*, **24**, 73-79 (2008)
- 7) Canter, K.F. and Mills, Jr., A.P.: *Can. J. Phys.*, **60**, 551-559 (1982)
- 8) Jinno, S., Oka, T., Kawaguchi, T., Muraya, T., Doyama, M., Kurihara, T., Matsuya, M., Ohtsuka, T., Inoue, M., Akahane, T. and Fujinami, M.: *Appl. Phys. Lett.*, 投稿準備中
- 9) Oshima, N., Suzuki R., Ohdaira, T., Kinomura, A., Narumi, T., Uedono, A. and Fujinami, M.: *J. Appl. Phys.*, **103**, 094916-1-7 (2008)
- 10) Jinno, S., Oka, T., Saito, Y., Kawashima, Y., Akahane, S., Suzuki, T. and Fujinami, M.: *Appl. Phys. Lett.*, 投稿準備中