

# 空孔評価のための陽電子マイクロビーム技術



大島 永康

おおしま ながやす  
nagayasu-oshima  
@aist.go.jp  
産業技術総合研究所  
計量標準総合センター  
分析計測標準研究部門  
X線・陽電子計測研究グループ  
研究グループ長

総合研究大学院大学・数物科学  
研究科修了、博士(理学)。  
2005年入所以来、陽電子ビーム  
の利用技術・施設の高度化、  
およびこれを用いた材料の原子  
～ナノサイズ空隙評価の研究  
に従事しています。

## 共同研究者

満汐孝治(産総研)、オローク  
ブライアン(産総研)、小林慶  
規(産総研)、大平俊行(産総  
研)、鈴木良一(産総研)、伊  
藤賢志(産総研)、上殿明良(筑  
波大学)、藤浪真紀(千葉大学)

電子の反粒子である陽電子を材料中に打ち込み、電子と消滅するまでの時間(寿命)を測定することで、材料中に存在する微小な空孔・空隙の構造情報を抽出することができます。この分析法は、陽電子寿命測定法と呼ばれています。電子線形加速器で発生した高強度の低速陽電子ビームを高効率に集束して、試料の目的とする局所領域に打ち込む技術を開発したことで、先端材料分析における陽電子寿命測定法の適用範囲が広がっています。

## はじめに

素粒子の一つ、陽電子は、物質中に打ち込まれると電子と対消滅して高エネルギーの光(消滅ガンマ線)を放出します。材料中で陽電子が消滅するまでの時間(陽電子寿命)は原子空孔のサイズや濃度に関係するため、それらを測定することによって、機械的性質、電気的性質、物質透過性など材料の様々な特性に影響する空孔・空隙を評価できます。この分析法は、陽電子寿命測定法(Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy: PALS)と呼ばれています。一方、機能性材料・先端材料の多くは、表面処理、薄膜積層化、微細化により機能を高めたり、効率を上げたりします。そのため、加工部材の表面近く、さらには部材の局所領域を選択的に解析することが重要です。しかし、電子加速器などで生成した直後の陽電子は速度がふぞろいで指向性もないため、試料の特定位置に陽電子を打ち込むことが難しく、PALSによる先端材料分析の適用範囲に制限がありました。

筆者はPALSの適用範囲を広げるため、高品質陽電子ビーム生成技術の開発を進めてきました。直径 $\Phi \sim 10$  mmの従来型陽電子ビームシステムを高度化した集束ビーム技術を開発し、一辺0.1 mm以下の部材評価への応用が可能になりました。この装置は、陽電子プローブマイクロアナライザー(positron probe micro-analyzer: PPMA)と呼ばれ、小さい試料のみならず、試料表面を集束ビームで走査することで、空孔の空間分布評価も可能です。また、陽電子の集束ビームを、微小真空窓を通して大気環境中へ取り出す技術も開発したことで、使用環境に影響される材料特性の“その場”評価にもPALSが活用され始めています。この測定装置は、環境制御PPMAと呼ばれています。本稿では、PPMA・環境制御PPMAを紹介いたします。

## PPMAの開発

産総研の前身の一つ、電子技術総合研究所では、電子加速器で発生した陽電子の指

向性をそろえた高強度ビームの生成技術を開発し、 $\Phi \sim 10$  mmビームのエネルギー(速度)を調整して深さ10 nm～1000 nmの表面近くを解析できる低速陽電子寿命測定装置を世界に先駆けて開発しました。現在も、多くの電子デバイス部材や機能性薄膜の空孔評価に活用されています。

実用的な時間内で測定可能なPPMAの開発には、この陽電子ビームの強度損失をできるだけ抑えて高効率集束する技術(マイクロビーム化技術)を開発する必要性がありました。陽電子ビームは発生部から実験室まで $\sim 30$  mもの長距離を複雑に湾曲したソレノイド磁場で輸送されるため、シミュレーションによる軌道解析が困難であり、かつ集束レンズは磁場中で機能しない性質があり、集束法のコンセプトがはっきりしない問題(インターフェース問題)がありました。

筆者は、ソレノイド磁場中から磁場の弱い領域にビームを引き出して、集束レンズで集束する方法を考案しました(図1(a)) [1, 2]。ソレノイド磁場から引きだされた直後にビーム径は一旦広がりますが、集束レンズが機能するので縮小できます。その際、ソレノイド出口付近の磁場強度(図中の調整コイル電流)を調整するだけで集束条件を最適化できることを明らかにして、複雑なソレノイド磁場中のビーム軌道解析が不要となりました。こうしてインターフェース問題は解決できました。しかし、集束後のビーム径は $\Phi 1$  mm程度で目標値より10倍以上悪く、マイクロビーム化には2段目のレンズを用いてさらに集束する必要性がありました。

1段目のレンズでの集束後、ビームの指向性が悪くなるため、2段目のレンズにまでビームを高効率に輸送できない問題が生じました(図1(b))。この解決のため、1段目レンズの直後に陽電子減速材(金属薄膜)を設置してビームの指向性を改善し、2段目集束レンズにまで高効率輸送する方法を考案しました。最終的に陽電子

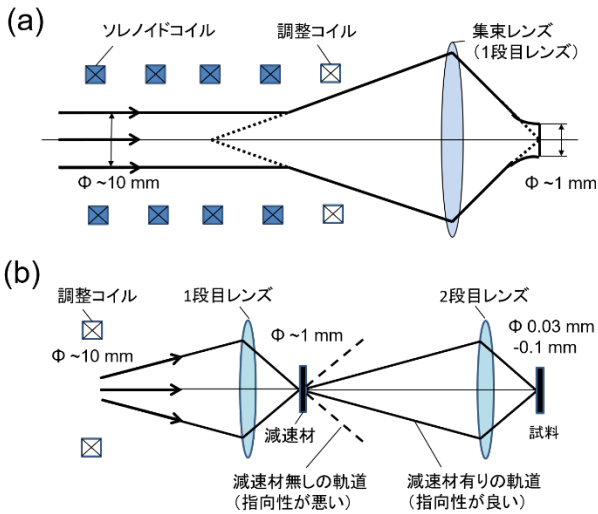


図 1(a) インターフェース問題解決のために考案したビーム集束方法の概略図。(b)減速材を用いた高効率 2 段集束システムの概略図 [1]。

ビームを効率~10%で試料上に  $\Phi$  数十  $\mu\text{m}$  で集束するシステムの開発に成功しました。

PPMA は、ビームをパルス化することで陽電子の試料入射時刻を決定し (スタート信号)、消滅ガンマ線を検出することで消滅時刻を決定し (ストップ信号)、それらの時間差から陽電子寿命を定義します (図 2)。試料への入射深さの調整は、加速部での加速エネルギーを調節することにより行います。図 2 に示した例のように、試料表面をビームで走査することで、空孔や欠陥の空間分布をイメージング評価することも可能です [1, 3, 4]。PPMA は、金属 [5]・半導体 [6]・高分子 [7] 等の小試料や局所部の評価に用いられています。

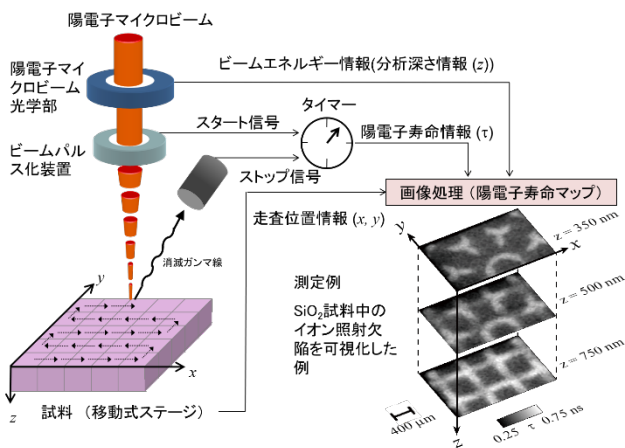


図 2 PPMA を用いた陽電子寿命測定法の概略図。ビームの打ち込み位置を 3 次元的に制御することで、微小試料の PALS 評価ができます。また、試料上をビーム走査することで、陽電子寿命マップを得ることもできます [1]。

環境制御 PPMA の開発

一般的に陽電子ビームは高真空チャンバー内で生成されるため、大気圧雰囲気下の材料を直接評価できませんでした。実用環境下にある材料の表面近傍や局所部を解析するため、PPMA 集束ビームを大気環境中に任意のエネルギー (速度) で取り出す技術の開発に取り組みました。

PPMA のビーム径は小さいため、大気圧を保持する真空窓の面積を小さくでき、厚みを薄くすることができます。窓の厚みが薄ければ、ビームが低エネルギー (低速) であっても高効率で透過することができるため、大気環境下にある試料の表面解析に好都合です。実際に、真空窓に面積  $0.3\text{ mm}^2$  (0.5 mm 角) 厚み 30 nm の SiN 薄膜を用いたことで、ほとんどの陽電子を大気環境下試料の表面近傍 (数百 nm) に打ち込んで PALS 評価することに成功しました。試料室の湿度を調整することで、高分子材料中の空隙サイズの湿度依存性評価等に用いられています (図 3) [8, 9, 10]。

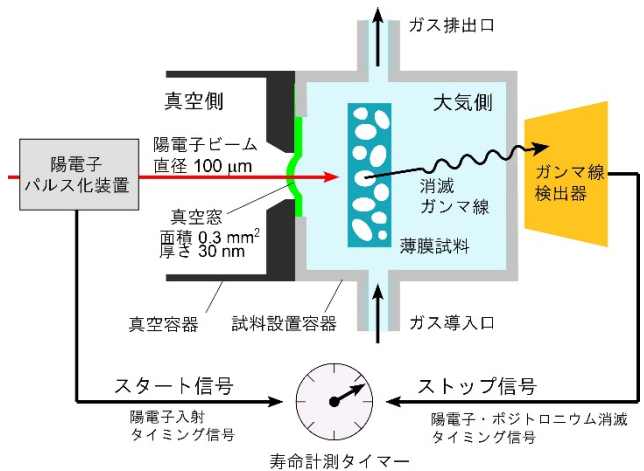


図 3 環境制御 PPMA 測定部の概略図 [8]

まとめ

陽電子ビームの高効率集束技術・大気環境取り出し技術を開発したことで、PPMA や環境制御 PPMA が実用化され、PALS の先端材料への適用範囲が広がりました。今後は、より高強度でより集束した陽電子ビームの発生技術を開発し、PALS の先端材料への適用範囲をさらに拡大させることで、先端材料開発に一層貢献したいと考えています。

参考文献

- [1] 大島永康、他、陽電子科学、1, 27 (2013).
- [2] N. Oshima, *et al.*, J. Appl. Phys. 103, 094916 (2008).
- [3] N. Oshima, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 94, 194104 (2009).
- [4] 産総研プレスリリース 2008 年 8 月「陽電子を用いた実用的な 3 次元極微欠陥分布イメージング法の開発」
- [5] T. Doshida, *et al.*, ISIJ Int. 52, 198 (2012); 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム <2015 年秀でた利用成果-1> <https://www.nanonet.go.jp/magazine/feature/excellent-result/12.html>
- [6] A. Uedono, *et al.*, J. Appl. Phys. 114, 084506 (2013).
- [7] T. Oka, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 101, 203108 (2012).
- [8] 産総研プレスリリース 2016 年 6 月「大気中に取り出した低速陽電子でみる分子のすき間」
- [9] W. Zhou, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 101, 014102 (2012).
- [10] K. Ito, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 112, 083701 (2018).