

# ポジトロニウム飛行時間分光法によるメソポーラスシリカのキャラクタリゼーションとその応用

田中宏幸  
 栗原俊一  
 Allen P. Mills, Jr.

Physics Department, University of California, Riverside  
 高エネルギー加速器研究機構  
 Physics Department, University of California, Riverside

互いにつながった多数の細孔中を長距離拡散できるポジトロニウム(Ps)を用いてナノサイズの細孔構造を調べることが出来る。細孔同士が外部に向かってつながっていると、その通路を通してPsは真空中へと拡散する。Psは電子と陽電子が対になった原子で質量が $2m_e$ と軽く、同じ温度でも他の原子と比べて、運動が速い。そのため、メソポーラスシリカ中での拡散、消滅過程を見るのに適している。メソポーラスシリカ薄膜の細孔構造の探査は次世代高性能半導体LSIの開発においても重要である。例えば、低誘電率の絶縁膜を実現する目的で、シリカ中に微小空隙を導入する研究が進められているが、新しい配線材料である銅の絶縁体中への拡散などの問題が指摘されている。陽電子飛行時間測定法(Ps-TOF)はサブナノメートルからナノメートルの領域の観測窓を提供するだけで無く、絶縁体中の原子拡散のデモンストラレーションにも用いることが可能である。

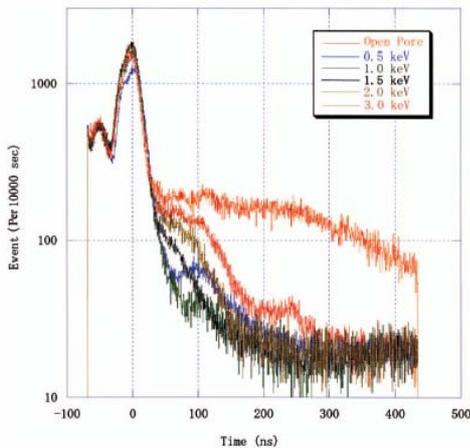


図1. 拡散バリア膜ありとなしに対するPs-TOFスペクトルの比較、スペクトルの入射エネルギー依存性も示してある。

KEK 低速陽電子実験施設では、2003年から専用加速器による本格的なPs TOF分光法システムによる実験が行われている。これまでに、装置の高性能化を行い、実用的な測定時間、低いバックグラウンド測定が可能となっている。我々は当施設において以下の様々なタイプのメソポーラスシリカ薄膜の性質をPs-TOF測定法により調べた:(1)メソポーラスシリカ薄膜上にスピノコーティング法により拡散バリアを生成したもの、(2)2次元かご状細孔構造を持つシリカ薄膜中に自己組織的に生成された超薄拡散バリア膜、(3)ゼオライトナノクリスタルベース

のオープンポアタイプのメソポーラスシリカ薄膜、である。図1にはスピノコーティング法による拡散バリア膜に対する結果が示されているが、ポーラス層にできたPsが少なくともライフタイムの間には真空中にほとんど漏れ出していないことを示唆している。当結果は、スピノコーティング法によって低誘電率絶縁膜の開孔率を人為的にコントロールすることができ、それによって誘電率や銅拡散に対する耐性等の物性を制御できることを示唆している。同様に2次元かご状メソ構造を有する多孔質シリカ膜を用いた測定では、自己組織的に生成された厚さ5nmの超薄拡散バリア膜が有効的に機能していることを示した。結果は大多数のPsが細孔数層といった極めて狭い領域に閉じ込められたことを示唆する。この膜に対して陽電子の面積密度を関数として、ポジトロニウム対消滅レートの測定をUCRの陽電子ビームを用いて行ったが高密度ポジトロニウムガスの存在を示唆する、スピン交換相互作用による対消滅を確認することが出来た。図2にはゼオライトナノクリスタルベースのオープンポアタイプのメソポーラスシリカ薄膜中でのPs冷却過程が通常のメソポーラス薄膜中のそれと比較されている。結果は通常の薄膜に比べて、Psの冷却レートが早いことを示している。これはゼオライト中の無数のマイクロポア起因のPs衝突断面積の増加によるものと考えられる。

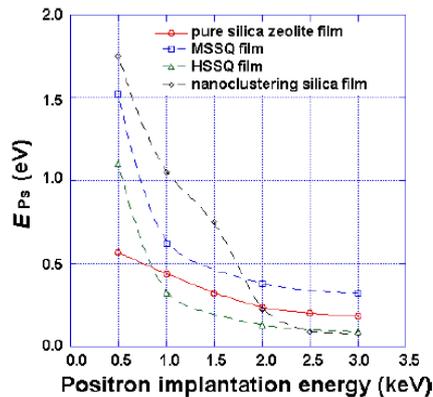


図2. ゼオライトナノクリスタルベースのオープンポアタイプのメソポーラスシリカ薄膜からのPs温度と入射エネルギーの比較を他の一般的なメソポーラス薄膜で行ったもの

本結果はポジトロニウム飛行時間分光法がメソポーラスシリカ薄膜の細孔構造の評価に役立つことを示しただけでなく、低温・高密度ポジトロニウムガスのポーズ=アインシュタイン凝縮へ向けての極めてエンカレジングなワンステップも示しているといえる。