

最近の研究から

透過型陽電子顕微鏡の開発

神野智史¹, 岡壽崇¹, 大塚岳志², 井上雅夫², 松谷幸², 栗原俊一³, 藤浪真紀¹

¹千葉大学大学院工学研究科共生応用化学専攻, ²日本電子株式会社, ³高エネルギー加速器研究機構

Development of a Transmission Positron Microscope

Satoshi Jinno¹, Toshitaka Oka¹, Takeshi Ohtsuka², Masao Inoue², Miyuki Matsuya²,
Toshikazu Kurihara³, Masanori Fujinami¹

¹Department of Applied Chemistry, Chiba University, ²JEOL, ³KEK

1. はじめに

固体に入射された陽電子は約 1 ps でそのエネルギーを失い、熱化した後、数百 ps 以内に電子と消滅を起し、2本の 511 keV の γ 線をほぼ反平行方向に放出する。この対消滅 γ 線の角度分散を測定する 2 光子角相関を用いれば、金属や合金のフェルミ面を測定することが可能である [1]。また陽電子は、空孔型格子欠陥に捕獲され寿命が長くなる性質を利用して、寿命測定による格子欠陥の研究にも供されている。

これらの実験には ²²Na などの放射性同位元素から β^+ 崩壊で放出される白色のエネルギー分布を持つ陽電子を用いていたため、物質のバルク分析に限られていた。そこで表面分析に展開するため単色化した陽電子ビーム源の開発が行われた。そこで利用されたのが、いくつかの物質が陽電子に対して負の仕事関数をもつという性質である。白色の陽電子はタングステンのような減速材に入射された後、単色化されて再放出される [2]。その効率は分光器を用いるよりもはるかに高く (10^{-4} 程度)、減速材による単色陽電子ビームが 1980 年ごろから利用され始めた。ここでは対消滅を利用する先述の方法以外にも、陽電子を正の電荷をもつ電子として、固体との新たな相互作用を利用する研究が展開され、電子との大きな違いが示された。固体表面第一層のみを選択的に測定する陽電子励起オージェ電子分光法や表面構造決定の精度が高い低速陽電子回折がその例である [3-8]。

さらに局所分析へ展開するための陽電子のマイクロビーム化への取組が 1980 年代後半から行われた。従来のビーム径は線源や単色化のための減速材の大きさ・形状に依存するため数 mm であった。陽電子マイクロビーム形成の問題点は、初期陽電子ビームの輝度の低さである。大量に発生する電子ビームであれば集束に適した部分のみを取り出すことにより、マイクロビーム化することができるが、放射性同位元素から発生する陽電子を単色化した際のビーム強度は毎秒 10^5 個程度であり、電子と同様の手法によるマイクロビーム化を適用すると、実質的なビーム輝度が得られない。これを克服するため、陽電子に対して仕事関数

が負である W や Ni などの再減速材にビームを集束し、表面の法線方向に再放出された陽電子を再び集束して発散角の広がりを低減する輝度増強法が考案されている [9,10]。

陽電子源の高強度化として、放射性同位元素による単色化よりも 2 から 3 桁強度の高い陽電子ビームが得られる加速器陽電子源の利用が期待されるが、そこからの陽電子ビームのマイクロビーム化には未だ成功例はない。本研究では KEK の低速陽電子実験施設においてマイクロビーム化を試み、世界唯一となる透過型陽電子顕微鏡を開発することを目的とした。それにより透過陽電子像や回折図形を取得し、陽電子と電子の物質透過能などの差異を議論する。

2. 実験装置

本研究には高輝度の陽電子ビームの供給が必須であることから、KEK 低速陽電子実験施設の LINAC を陽電子源として使用した [11]。LINAC からの加速電子 (56 MeV, 50 Hz, パルス幅 1.2 μ s, ~ 200 nC/bunch) を Ta ターゲットに照射し、制動放射 X 線による対生成により陽電子を放出する。その高エネルギー陽電子を短冊状にしたタングステン薄板に照射して単色陽電子を放出させ、それを静磁場中に引き出し輸送する。一方で、陽電子ビーム強度は RI のそれに比べ 2 桁以上も高いが、それでも電子銃に比較して輝度は $1/10^{16}$ 程度であり、マイクロビーム化には陽電子に特有の光学系を必要とする。実用的な陽電子マイクロビームを生成するためには十数 mm 径の陽電子ビームに対して面積を $1/10^4$ に縮小させながら、強度は数 % 程度に維持しなければならず、単に電子光学の技術を利用するだけでは目標を達成することは困難である。いわゆる輝度保存則によりレンズ系のみでマイクロビームを生成することができない。また本ビームラインでは、数十ガウスの静磁場に沿って陽電子を輸送し、収束の段階では静電レンズを用いる。輸送系の磁場が収束される陽電子の軌道を乱すことがないよう、効率よく磁場を切り離す必要がある。したがって技術課題は、いかにして損失を抑え、輝度の高い陽電子ビームを輸送・集束させることにある。

これらの問題を解決するためにビームの磁場からの切り

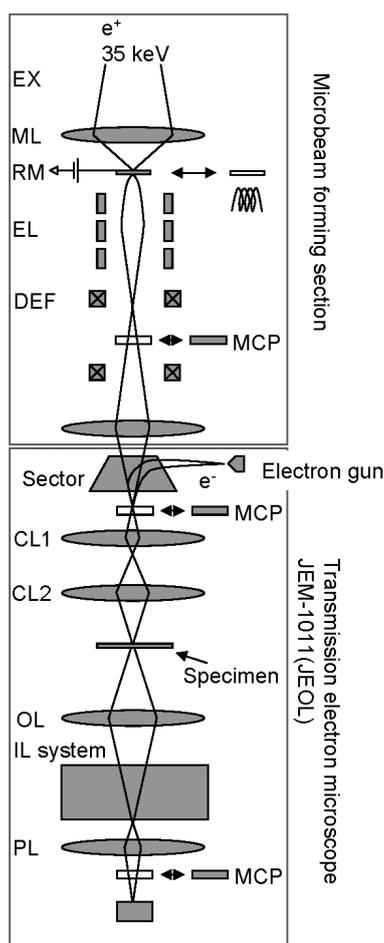


Figure 1

Schematic diagram of a transmission positron microscope. EX: extraction coil, ML: magnetic lens, RM: a transmission type remoderator Ni(100) foil with 15 nm thick, EL: electrostatic lens DEF: deflectors, CL: condenser lens, OL: objective lens, PL: projective lens, MCP: micro-channel plate.

離しと磁界レンズによる集束の組み合わせ、さらに透過型再減速材を採用した輝度増強法を考案した [12]。複雑な光学系を必要とする従来の反射型再減速材ではなく、透過型再減速材を適用することで、全体が簡素化された光学系となり、開発期間の短縮や開発コストの低減が可能となった [13]。Fig. 1 に今回開発した光学系の概略図を示す。陽電子ビームは陽電子源で 35 keV に加速され、数十 m 離れた測定ホールまで 60 ガウスの静磁場で輸送され、さらに電子顕微鏡に導入するため 4.3 m の高さまでいったん上昇させる。まず陽電子ビームはマイクロビーム化のために磁場から切り離されるが、同時に磁界レンズによる集束を考案した。輸送用の最終コイル（引出コイル）で逆方向に磁場を発生させることにより、下流側への磁場の漏れを解決し、かつ磁界レンズの特性に合致するように陽電子の発散を制御する。これにより陽電子ビームは磁場から切り離され、透過型再減速材である 150 nm 厚の Ni(100) 薄膜 [14] に集束される。30 keV に印加された Ni(100) 薄膜に入射された陽電子は熱化、拡散し、負の仕事関数により裏面から法線方向に 1 eV で再放出される。発散角が抑制され輝度増強された陽電子ビームは静電レンズ、偏向器を通過し、30

keV で透過型電子顕微鏡に導かれ、クロスオーバー位置に集束される。陽電子でも電子でも電荷が異なるのみであるので、集束系および結像系とも従来の透過型電子顕微鏡をそのまま利用できる。本来の電子銃の位置にセクターマグネットが設けられており、90° 方向から入射された電子ビームも同じクロスオーバー位置に導入され、陽電子・電子を瞬時に切り替えて透過像を得ることができるように設計した。

3. 透過型再減速材

輝度増強用の再減速材に要求されることは、仕事関数が負であることはもちろん再放出効率が高く、単色性に優れていることである。欠陥除去のための熱処理法や安定性などの扱いやすさも重要である。従来は反射型のみであり、光学系としては単純になる透過型が用いられない理由は、それらの問題点を克服できなかったことにあった。金属単結晶薄膜の再減速材の候補には Ni と W がある。Ni の陽電子に対する仕事関数は -1 eV [15] と小さいために W の -3 eV [16] と比べて陽電子の放出エネルギー幅が狭くなり有利であるが、表面が酸化しやすいことと破れやすいことが問題である。それに対して W は Ni に比べて破れにくく表面状態が安定である。以上のような一長一短があるが、本研究ではビームエネルギーの単色性を優先し、かつ平坦な面が得られることから厚さ 150 nm の Ni(100) 単結晶薄膜を採用し、その熱処理方法を考案した。

再減速材の欠陥や表面の吸着物は陽電子を捕獲するサイトとなるため、これらを除く必要がある。再減速材はあらかじめ、60 mL/min の水素フロー中で 50 分間 750°C のアニールを行った。これにより欠陥除去および水素による炭素や酸素といった不純物の除去を実施した。そして実験直前にはマイクロビーム化装置内において原子状水素処理による表面酸化膜除去の処理を行った。その内容は、可動式の再減速材ホルダーを真空装置内でタンガステンフィラメントの近くまで移動させ、フィラメントを水素分子が解離する温度である 1600°C まで通電加熱し、水素ガスを真空槽に 4×10^{-3} Pa 導入し、1 時間処理することである。

高い再放出効率を得るためには多くの陽電子を再減速材の裏面に近い深さに注入する必要がある。熱化後の陽電子の拡散距離が 100 nm 程度であることを考慮すると 150 nm 厚の Ni で 5 keV 程度のエネルギーで高い効率が得られると考えられる。実際に 150 nm 厚 Ni(100) 単結晶薄膜の裏面からの陽電子再放出量の入射エネルギー依存性を測定したところ、入射エネルギーが 5 keV 近くで効率が最大になることが確かめられ、透過効率は 6.3% であった。

4. 一次ビームの評価

マイクロビーム形成部に入射される 35 keV の一次陽電子ビームを評価した。ビーム軸から 24 cm 離れた位置に電離箱を設置し、陽電子消滅による 511 keV の γ 線線量を計測して強度を見積もった。加速器からの初期ビームは陽電子輸送系の最適化により、強度 8×10^6 e⁺/s と見積もられ、

ナイフエッジ法によりそのビーム径は約 17 μm であった。

5. 透過像, 回折図形の評価

本透過型陽電子顕微鏡を用いて C, Al, Si, Cr, Ni, Cu, Au などの薄膜試料の透過陽電子像を取得した。Fig. 2 に代表例として 10 nm 厚の Au[100] に対する 3000 倍相当での透過像を示す。露光時間は 10.6 時間である。高分子の支持膜であるマイクログリッドの孔の部分が明るく露光されており, Au 薄膜部分は暗くなっている。陽電子と電子とで結像系レンズのパラメータをほぼ同様にして撮影すると, 透過像の回転角のみが変化する。これは電荷が逆であるために磁界レンズによる回転方向が逆になるからである。実際に電子と陽電子とで像を比較すると回転しており, 真に陽電子透過像であることが実証された。同じく Au[100] に対する回折図形を Fig. 3 に示す。露光時間は 1 時間である。(004) 以上の高次の回折スポットまで明瞭に観察された。以上のように本研究により透過陽電子像と回折図形が初めて得られた。

陽電子と電子の透過率を評価のために集束レンズ絞りと対物レンズ絞りをを変えて透過像を撮影した。集束レンズ絞りはビームのエミッタンスを小さくする役割をし, 対物レンズ絞りは試料を透過した陽電子および電子の散乱角を制限する役割をする。すなわち絞りを挿入することは透過率の散乱角依存性を測定することに相当する。それぞれの条件で得られた像から試料のある部分と無い部分の明るさを

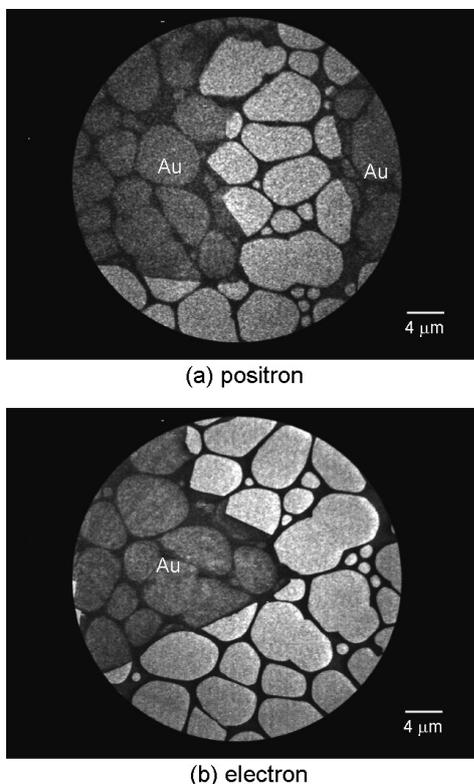


Figure 2 Transmission positron (a) and electron (b) images of Au[100] foil with 10 nm thick measured by using a MCP with phosphor. The Au foil is supported by a micro grid on a copper mesh.

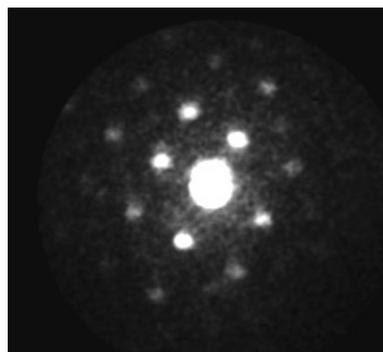


Figure 3 Positron diffraction pattern for crystal orientation [100] of Au single crystal.

比較して試料に対する陽電子, 電子の透過率を評価した。対物絞り小さくすると試料により散乱されてくる陽電子, 電子を遮るので透過率は下がる。現状の評価ではどの試料においても陽電子と電子の透過率に有意な差は認められなかった。それに対し回折図形のスポット強度比には陽電子と電子とで差が認められた。高次のスポットにおいて陽電子は電子に比べて強度が高く現れる傾向にあった。これについては今後, 本質的な違いかビームエミッタンスの影響かを検証していく。

6. まとめ

KEK の低速陽電子実験施設において高強度陽電子ビームの磁場からの切離しおよび輝度増強を試みることににより陽電子マイクロビームを形成し, 高倍率での透過陽電子像および回折図形を取得することができた。陽電子と電子の透過率は誤差の範囲内でおおむね一致した。一方で陽電子と電子では弾性散乱, 非弾性散乱それぞれの断面積, あるいは阻止能の違いがあるとの報告がある [17-19]。そのためビームエミッタンスのさらなる向上や長時間の露光で誤差を小さくする取組により差異が現れる可能性がある。また試料を厚くすることによって散乱頻度を大きくすれば, 透過率の差がより強く現れると考えられる [20]。さらには陽電子エネルギー損失分光を行えば, バックグラウンドが極めて低いことから高い S/B 比での損失スペクトルを得ることができると期待される。

陽電子の原子空孔検出能を生かした空孔二次元分布計測, 散乱・回折の電子との差を利用した構造解析, 表面局在化による局所最表面分析など特徴ある分析手法を展開するには, 高強度陽電子源は必須であり, 今回そのマイクロビーム形成に成功したことは, 大きな意義がある。

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), 赤羽隆史 (物材機構), 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) との共同研究である。また, 高強度陽電子発生および運営は, KEK 加速器研究施設の大沢哲教授, 設楽哲夫教授, 物質

構造科学研究所の柳下明教授により実施されたものであり、心より感謝申し上げます。

引用文献

- [1] W Brandt, A Dupasquier, "Positron Solid-State Physics", (North-Holland, 1983).
- [2] B. Y. Tong, Phys. Rev. B **5**, 1436 (1972).
- [3] P. J. Schultz and K. G. Lynn, Rev. Mod. Phys., **60**, 701 (1988).
- [4] T. N. Horsky, G. R. Brandes, K. F. Canter, C. B. Duke, S. F. Horng, A. Kahn, D. L. Lessor, A. P. Mills, Jr., A. Paton, K. Stevens, and K. Stiles, Phys. Rev. Lett. **62**, 1876 (1989).
- [5] C. B. Duke, D. E. Lessor, T. N. Horsky, G. Brandes, K. F. Canter, P. H. Lippel, A. P. Mills, Jr., A. Paton, and Y. R. Wang, J. Vac. Sci. Technol. A **7**, 2030 (1989).
- [6] X. M. Chen, K.F. Canter, C. B. Duke, A. Paton, D. L. Lessor, and W. K. Ford, Phys. Rev. B **48**, 2400 (1993).
- [7] Y. Fukaya, A. Kawasuso, and A. Ichimiya, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **3**, 228 (2005).
- [8] A. Weiss, R. Mayer, M. Jibaly, C. Lei, D. Mehl, and K.G. Lynn, Phys. Rev. Lett. **61**, 2245 (1988).
- [9] A. P. Mills, Jr., Appl. Phys. **23**, 189 (1980).
- [10] K. F. Canter and R. Xie, Mater. Chem. Phys. **52**, 221 (1998).
- [11] T. Kurihara, Y. Nagashima, T. Shidara, H. Nakajima, S. Ohsawa, M. Ikeda, T. Oogoe, K. Kakihara, Y. Ogawa, A. Shirakawa, K. Furukawa T. Sanami, and A. Enomoto, Mater. Sci. Forum **445**, 486 (2004).
- [12] N. Oshima, R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Kinomura, T. Narumi, A. Uedono, and M. Fujinami, J. Appl. Phys. **103**, 094916 (2008).
- [13] M. Fujinami, S. Jinno, M. Fukuzumi, T. Kawaguchi, K. Oguma, and T. Akahane, Anal. Sci. **24**, 73 (2008).
- [14] P. J. Schultz, E. M. Gullikson, and A. P. Mills, Jr., Phys. Rev. B **34**, 442 (1986).
- [15] G. Fletcher, J. L. Fry, and P. C. Pattnaik, Phys. Rev. B **27**, 3987 (1983).
- [16] J. M. Dale, L. D. Hulett, and S. Pendyala, Surf. Inter. Anal. **2**, 199 (1980).
- [17] H. H. Seliger, Rhys. Rev. **100**, 1029 (1955).
- [18] J. C. Ashley, J. Elec. Spec. Relat. Phenom. **50**, 323 (1990).
- [19] W. N. Lennard, G. R. Massoumi, P. J. Schultz, P. J. Simpson, G. C. Aers, Phys. Rev. Lett. **74**, 3947 (1995).
- [20] M. J. Berger, Appl. Radiat. Isot. **42**, 905 (1991).

(原稿受付日：2009年3月21日)

著者紹介

神野智史 Satoshi JINNO

千葉大学大学院工学研究科 産学官連携研究員
〒263-8511 千葉市稲毛区弥生町 1-33

略歴：2007年東京都立大学大学院理学研究科博士課程修了，2007年より現職。博士（理学）。

最近の研究：透過型陽電子顕微鏡開発。

岡 壽崇 Toshitaka OKA

千葉大学大学院工学研究科 産学官連携研究員
〒263-8511 千葉市稲毛区弥生町 1-33

略歴：2003年早稲田大学大学院理工学研究科博士後期課程修了，2004年早稲田大学理工学総合研究センター 客員講師，2005年産業技術総合研究所 特別研究員，2008年より現職。博士（理学）。

最近の研究：陽電子科学，放射線化学。

大塚岳志 Takeshi OHTSUKA

日本電子株式会社 開発本部
〒196-8558 東京都昭島市武蔵野 3-1-2

略歴：2004年長岡技術科学大学大学院工学研究科博士前期（修士）課程機械システム工学専攻修了，同年日本電子株式会社入社。電子光学機器関連の製品開発に従事。

井上雅夫 Masao INOUE

日本電子株式会社 電子光学機器本部（派遣）テクニカルコンサルタント

〒196-8558 東京都昭島市武蔵野 3-1-2

略歴：1972年神戸大学理学部卒業，同年日本電子入社，2008年日本電子テクノサービス入社。電子顕微鏡の磁区観察，電子光学系の軸合せシミュレーション技術などのサポートに従事。

松谷 幸 Miyuki MATSUYA

日本電子株式会社 開発本部

〒196-8558 東京都昭島市武蔵野 3-1-2

略歴：1979年日本大学大学院理工学研究科博士前期課程（修士）物理学専攻修了，同年日本電子株式会社入社。電子光学機器関連の製品開発に従事。

栗原俊一 Toshikazu KURIHARA

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 講師

〒305-0801 つくば市大穂 1-1

略歴：1989年筑波大学大学院工学研究科博士課程修了，高エネルギー加速器研究機構 助手。工学博士。

藤浪真紀 Masanori FUJINAMI

千葉大学大学院工学研究科 教授

〒263-8511 千葉市稲毛区弥生町 1-33

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

略歴：1987年東京大学大学院工学系研究科博士課程修了，新日本製鐵株式会社第一技術研究所，1998年東京大学大学院工学系研究科助教授，2004年千葉大学工学部助教授，2009年同教授。工学博士。

最近の研究：陽電子ビーム利用分析，レーザー分光。