

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 8日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21340087

研究課題名（和文）大気陽電子顕微鏡の開発

研究課題名（英文）DEVELOPMENT OF AN ATMOSPHERIC
POSITRON MICROPROBE

研究代表者

大島 永康（OSHIMA NAGAYASU）

独立行政法人産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・主任研究員

研究者番号：00391889

研究成果の概要（和文）：大気中の実環境下において、材料中の原子空孔をその場分析する装置である大気陽電子顕微鏡の開発を行った。実際に試作機を完成させ仕様を明らかにしたことで、大気陽電子顕微鏡実用化の目途を得るに至った。試作機を用いて、パルス化して集束した陽電子ビームを大気中に低速で引き出して、従来には不可能であった大気中実環境下にある機能性薄膜材料等中の分子間空隙を、陽電子寿命測定法により非破壊的に定量評価することに成功した。

研究成果の概要（英文）：An atmospheric positron microprobe has been developed which can detect atomic defects in materials placed in air. A prototype device has been constructed and characterized, and practical application of the positron microprobe demonstrated. Using the prototype device a pulsed, focused, slow positron beam was extracted into air and previously impossible 'in-situ' measurements of atomic defects in functional thin films and other materials were undertaken. By measuring the positron lifetime in these materials we were able to perform non-destructive defect characterization in atmospheric conditions.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	8,400,000	2,520,000	10,920,000
2010年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
2011年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	14,400,000	4,320,000	18,720,000

研究分野：数物系化学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：大気陽電子顕微鏡、大気陽電子プローブマイクロアナライザー、陽電子消滅

1. 研究開始当初の背景

材料のもつ、機械的強度、電氣的絶縁性、分子透過性といった様々な特性は、材料を形成する元素の組み合わせだけでなく、結晶材料中の原子空孔やナノボイド、非晶質材料中の分子間空隙（自由体積・ナノ空間）等、原子～ナノメートルサイズの微小空隙構造に左右される。特にナノテクノロジー分野では、金属、半導体、セラミックス、高分子など各種素材を表面処理したり、薄膜形成したりし

て、目的とする特性を付与し機能性部材とする場合が多く、これら材料の研究開発では表面近傍の微小領域での原子空孔・ナノ空間の大きさを精密に解析することが求められている。しかし、原子空孔やナノ空間の大きさの定量評価を、試料の表面近郊の局所領域に限って選択的に行うことは一般に困難とされている。

このため、パルス化して集束した低速の陽電子ビームを用いて、材料中の局所的な領域

の原子空孔やナノ空間の大きさを定量評価する装置（陽電子顕微鏡、あるいは陽電子プローブマイクロアナライザーとも呼ばれる）が2008年に産業技術総合研究所（産総研）で開発され、さまざまな先端材料の開発に用いられてきた。

一方、材料によっては、原子空孔やナノ空間の特性が使用環境中のガスの種類や湿度に影響を受けると考えられている。しかし、これまで陽電子顕微鏡の利用は、真空槽内での測定に限定されていたので、これらの材料が大気中の実用環境下にある際の空孔やナノ空間の評価はできなかった。そこで、実用環境下にある試料に適応可能な陽電子顕微鏡、すなわち大気陽電子顕微鏡の開発が求められていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、大気陽電子顕微鏡の要素技術を開発し融合して、実際に試作機を完成させその仕様を明らかにすることで実用化に目途をたて、またその有用性も実験的に示すことにある。なお、大気陽電子顕微鏡とは、パルス化したエネルギー可変集束陽電子ビームを真空窓を通して大気中に取り出し、大気中に設置した薄膜や微小試料中の陽電子寿命を計測して原子空孔やナノ空間の空隙を定量評価する分析装置である。図1に大気陽電子顕微鏡の概念図を示した。この分析装置は、従来不可能であった実用環境下（湿度制御ガス中あるいは応力負荷中）にあるバリア膜・保護膜・電子デバイス用絶縁膜等の機能性薄膜材料の空隙特性を評価できるため、これらの材料の効率的な開発に役立つことが期待される。

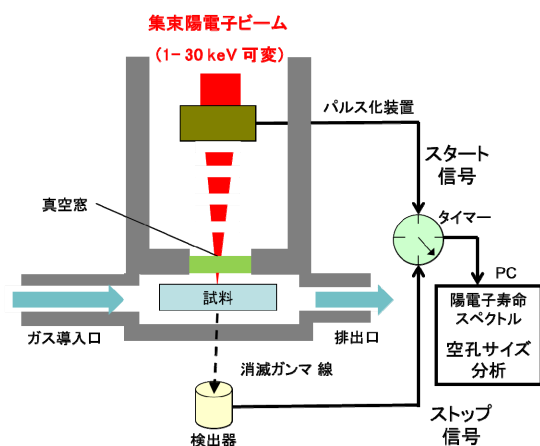


図1. 大気陽電子顕微鏡の概念図

3. 研究の方法

大気陽電子顕微鏡は、次に挙げる要素技術（パルス化高輝度陽電子ビーム源、ビーム速度調整部、ビーム取り出し真空窓、ビーム走査部）を融合して初めて分析装置として運用

可能になる。以下では、個々の要素技術毎に、研究内容および研究方法を整理する。

(1) パルス化高輝度陽電子ビーム源

産総研の既存のものを用いる。電子線形加速器を用いて発生した低速陽電子ビームをパルス化装置・集束レンズ・陽電子減速材を通すことでパルス化および高輝度化を行う。大気陽電子顕微鏡に適したビームパルス時間幅と径は、それぞれ300ピコ秒、100マイクロメートル程度であり、これを実現するために装置運転パラメーターの最適化を進めた。

(2) ビーム速度調整部（ビーム加速部）

陽電子ビームは、真空窓を透過して大気圧環境に引出され、なおかつ薄膜や試料表面付近でほとんど停止するようにその速度（エネルギー）を調整しなくてはならない。最適な加速エネルギーは、真空窓と試料の密度や厚みに依存するので、開発するビーム速度調整部は広い加速エネルギー範囲（1-50 keV）に対応できる必要がある。このため、低エネルギー加速（30keV以下）に適した静電加速方式と高エネルギー加速（30 keV以上）に適したRF加速方式の両方式について開発を進めた。

(3) ビーム取り出し真空窓

陽電子を低エネルギーで大気中に効率よく取り出すためには、窓厚は可能な限り薄い方が良く、同時にサイズはビーム径に比べて十分大きくなくてはならない。また、一方で、当然のことながら、真空を安定に保持する機械的強度を持ち合わせていなくてはならない。開発するビーム速度調整部の仕様やパルス化高輝度陽電子ビーム源の運転パラメーターは、真空窓の仕様に合わせなくてはならないので、本研究を成功させるうえ鍵となる開発項目であった。

(4) ビーム走査部

大気陽電子顕微鏡では、陽電子ビームを微小な真空窓を通して大気側に引出して、大気中の試料の微小領域に入射する必要がある。このためビーム軌道調整（走査）を正確に行う必要がある。本研究では、ビーム軌道を固定して、真空窓および試料側を機械的に移動することで、ビーム走査するシステムの開発を行った。

上記の要素技術をそれぞれ独立に研究し、信頼できる技術として確立した後、相互に制御パラメーターを整合させ、融合することにより、大気陽電子顕微鏡試作機の開発を進めた。大気陽電子顕微鏡の分析装置としての有用性、および実用化への可能性を明確にするため、試作機を用いて実環境にある薄膜材料

の空孔評価を行った。

4. 研究成果

ビーム大気取出し用真空窓に適した薄膜材を選定するために、ベリリウム、チタン、カプトン、窒化シリコン(SiN)等の材料の優位性について検討を行った。本研究に用いる真空窓は、ビーム径(0.1mm)より十分大きいサイズで一気圧を保持することができ、さらに密度と厚さの積(視線密度)が可能な限り小さいことが望ましい。SiN 薄膜材は、サイズ 0.5mm 角、および厚み 30nm で一気圧を保持することが明らかとなり、他の薄膜材に比べて視線密度が小さく、現時点で本研究に最も適した材料であることがわかった。

真空窓は破損するとビームラインに空気が突入することになり、システム全体が大きな被害を受けることになる。従って、薄膜製の真空窓を実用化するためには、信頼性の高い(破損の心配が無い)ものを開発する必要がある。そこで、SiN 真空窓を準備し、真空引き・耐熱・耐摩擦・耐水テストを繰り返し行うことで信頼性をテストし、実用的な適用範囲を明らかにした。実際に開発した SiN 真空窓の写真を図 2 に示した。

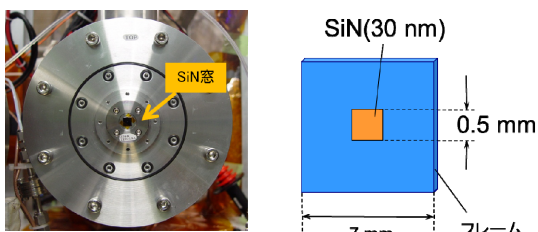


図 2：ビームラインに設置した SiN 薄膜の写真(左)およびそのジオメトリ(右)

ビーム速度調整部として、静電加速管(静電加速方式)と RF 加速空洞(RF 加速方式)の開発を行った。開発した静電加速管(1-30 keV 用)は、10 枚のアパーチャー電極から構成されている。一方、開発した RF 加速空洞(50keV 加速用)は、共振周波数 500MHz の同軸型である。開発した加速部の写真を図 3 に示した。

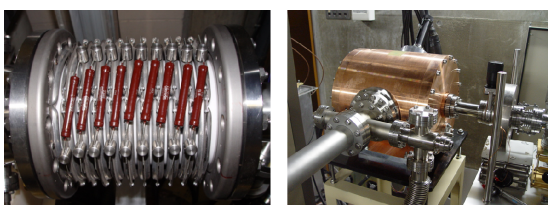


図 3：静電加速管(左)と RF 加速空洞(右)

モンテカルロシミュレーションの結果から、30nm 厚の SiN 真空窓を用いれば、2keV 程度の非常に低いエネルギーの陽電子でも

約 50%の割合で大気中に取り出せることが予想された(図 4 参照)。数 keV 程度の低エネルギー陽電子ビームを大気中で利用できれば、機能性薄膜材料や電子デバイス材料の表面近郊(数百ナノメートル以下)の空孔・ナノ空間の実環境評価に適用できることから、大気陽電子顕微鏡の開発意義は、学术界だけでなく産業界にとっても非常に大きいものになる。そこで、大気陽電子顕微鏡の試作機には、静電加速方式を採用して、主に低エネルギービームの大気取出し性能を実験的に調べることにした。

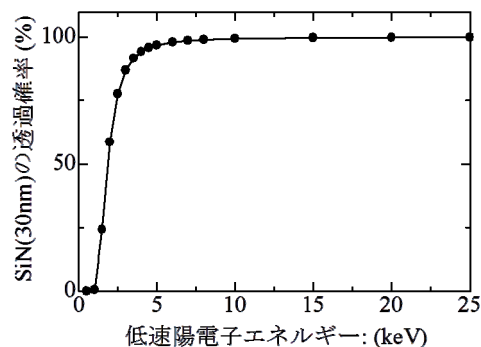


図 4：モンテカルロシミュレーション結果

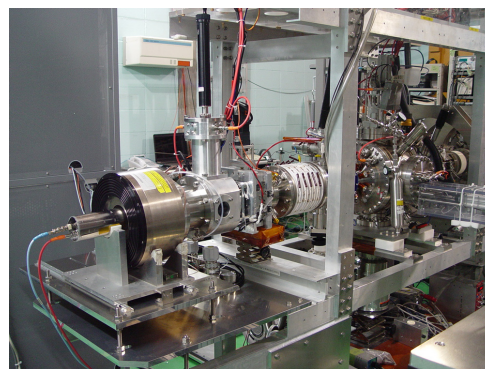


図 5：大気陽電子顕微鏡試作機の写真

製作した大気陽電子顕微鏡試作機の写真を図 5 に示す。試作機を用いて陽電子ビーム(ビーム径: 100 μメートル)を 1-25 keV のエネルギー範囲で加速し、SiN 真空窓を通して大気中の薄膜材料(Si 基板上的熱酸化膜や高分子薄膜試料等)の陽電子寿命測定を行った。実際に、2keV の陽電子ビームは約 50%程度の割合で大気側に取り出せることが実験的に明らかとなり、大気中の実用環境下でも、陽電子寿命測定法を用いて薄膜中の空孔測定が可能なことを世界で初めて実証した。大気中に設置した試料内での陽電子入射分布を、各種の実験結果を解析する事で明らかに

することにも成功し、分析装置の特性を明確にした。

以上のように、大気陽電子顕微鏡の要素技術を開発し、実際に試作機を完成させ性能を評価した。また、大気中に設置した数百ナノメートル厚の試料に対して、陽電子ビームによる欠陥分析が可能であることを実証し、その有用性を示した。従来には不可能であった実用環境下にある機能性薄膜材料の空隙特性を評価する新しい計測技術を確立した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計8件)

- ① W. Zhou, Z. Chen, N. Oshima, K. Ito, B. E. O' Rourke, R. Kuroda, R. Suzuki, H. Yanagishita, T. Tsutsui, A. Uedono, N. Hayashizaki, “ In-situ characterization of free-volume holes in polymer thin films under controlled humidity conditions with an atmospheric positron probe microanalyzer”, Applied Physics Letters (2011) (掲載決定)、審査有
DOI : <http://apl.aip.org/>
- ② N. Oshima, B. E. O' Rourke, R. Kuroda, R. Suzuki, H. Watanabe, S. Kubota, K. Tenjinbayashi, A. Uedono, N. Hayashizaki, “Slow Positron Beam Apparatus for Surface and Subsurface Analysis of Samples in Air”, Applied Physics Express 4 (2011) 066701、審査有
DOI: 10.1143/APEX.4.066701
- ③ B. E. O' Rourke, N. Hayashizaki, A. Kinomura, R. Kuroda, E. J. Minehara, T. Ohdaira, N. Oshima, R. Suzuki, “Simulations of slow positron production using a low-energy electron accelerator”, Review of Scientific Instruments 82, 063302 (2011)、審査有
DOI: 10.1063/1.3599156

[学会発表] (計20件)

- ① 平良創太、林崎規託、大島永康、オローク・ブライアン、黒田隆之助、鈴木良一、「陽電子用小型線形加速器の開発」、原子力学会・2011年秋の大会、2011年9月21日、福岡県、北九州国際会議場
- ② 大島永康、オローク・ブライアン、黒田隆之助、鈴木良一、伊藤賢志、柳下宏、天神林和樹、筒井拓朗、上殿明良、林崎

規託、「低速陽電子ビームを用いた大気中試料の空孔分析法の開発」、日本物理学会2011年秋季大会2011年9月21日、富山大学

- ③ 林崎規託、大島永康、オローク・ブライアン、黒田隆之助、鈴木良一、「大気陽電子顕微鏡用高周波加速空洞の開発」、第6回日本加速器学会、2009年08月06日、日本原子力研究機構・原子力科学研究所(茨城県)

[その他]

産業技術総合研究所プレスリリース(2012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」

<http://unit.aist.go.jp/riif/ja/results/press.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大島 永康 (OSHIMA NAGAYASU)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・主任研究員
研究者番号：00391889

(2) 研究分担者

林崎 規託 (HAYASHIZAKI NORIYOSU)
東京工業大学・原子炉工学研究所・准教授
研究者番号：50334537
黒田 隆之助 (KURODA RYUNODUKE)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・主任研究員
研究者番号：70350428
鈴木 良一 (SUZUKI RYOICHI)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・副研究部門長
研究者番号：80357300
ブライアン オローク (O' ROURKE BRIAN)
産業技術総合研究所・計測フロンティア研究部門・研究員
研究者番号：60586551

(3) 連携研究者

無し