

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24310080

研究課題名(和文)イオン・陽電子同時照射系を用いるトランジェント陽電子計測法の開発

研究課題名(英文)Development of a transient positron measurement system using ion-positron simultaneous irradiation

研究代表者

木野村 淳(Kinomura, Atsushi)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究者番号：90225011

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円

研究成果の概要(和文)：イオン照射で形成される欠陥を照射と同時に陽電子寿命測定ができるイオン・陽電子複合ビーム分析装置の開発を行った。パルスイオンビームと、電子リニアックで発生するパルス低速陽電子ビームのタイミングを変えて照射し、20 μ sの時間幅で、陽電子寿命測定できるシステムを構築した。このシステムを用いて、酸化Si試料や純金属試料に対する同時照射実験を行った。純Ni試料に対する実験では、表面からの陽電子再放出を調べることで、イオン照射誘起欠陥の過渡変化を観測できることが示された

研究成果の概要(英文)：Ion-positron dual-beam analysis system for in-situ detection of ion-irradiation induced defects was developed. The developed system made it possible to perform positron lifetime measurements with a time window of 20 microsecond under synchronized irradiation of pulsed ion beams and electron-linear-accelerator based positron beams. Dual beam irradiation experiments were performed for Si oxide and pure metal samples by using this system. The experiments for pure Ni samples indicated that the transient change of ion-irradiation induced defects can be detected from positrons re-emitted from the surface.

研究分野：ビーム応用、照射効果

キーワード：陽電子 イオン照射 照射損傷 その場分析

1. 研究開始当初の背景

中性子やイオンなど高エネルギー粒子による材料の照射損傷の基礎過程を理解するための有力な手段として、損傷導入と同時に測定を行うためのその場測定法の研究が行われてきた。イオン加速器と結合した透過型電子顕微鏡をはじめ、様々なタイプの装置が開発され、その延長線上で、イオン加速器結合型の陽電子計測装置が提案された。2004年には、バンデグラフ加速器からの MeV イオンビームと ^{22}Na 線源から得られた低速陽電子ビームを同時照射し、陽電子ドプラ拡がりその場測定を行う装置が東大から発表された。陽電子計測は原子レベルの微細な空孔を検出できる有力な方法であり、透過電子顕微鏡で検出できないサイズの原子空孔を検出できる可能性がある。一方で、上記のシステムに用いられたドプラ拡がり測定では、空孔サイズを直接見積もることが困難である。このため産業技術総合研究所(産総研)では、空孔サイズの直接測定が可能な陽電子寿命測定とイオン照射を組み合わせた複合ビーム分析装置の開発を行ってきた。

2. 研究の目的

産総研で開発されたその場分析装置では、陽電子源として電子直線加速器(電子リニアック)が用いられたが、従来、陽電子源として加速器を用いる目的は、高強度の陽電子ビームを得るためであった。本研究では、電子リニアックを高強度陽電子源というよりパルス陽電子源として考え、イオン・陽電子同時照射を用いた照射誘起欠陥の時間分解測定を行うことを目指した。すなわち、パルスイオンビームとパルス陽電子ビームを同期して固体材料に照射し、その二つのビームの照射タイミングを制御することにより、照射誘起欠陥の過渡的な状態の測定を可能にすることが本研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 電子リニアックベースの低速陽電子ビームラインでは、陽電子はマイクロ秒オーダーの時間幅のパルスとして得られる。これをそのまま試料チャンバーに送っても、短時間に集中的に陽電子消滅イベントが発生するため、アナログ式時間波高分析回路では信号が飽和して追従できない。このため、従来のシステムでは、リニアストレージで陽電子蓄積とパルスストレッチを行う必要があった。一方、本研究のシステムでは、高速波形デジタルで陽電子消滅信号を一括して取り込み、パソコン上で波形解析を行うことにより陽電子寿命スペクトルを得る。この方法により、数 10 マイクロ秒オーダーの時間分解測定が実現できる。本研究では、損傷導入用のイオンビームもチョッパーでパルス化して、陽電子の照射タイミングと同期することにより、損傷状態の変化を時間分解測定できるシステムを開発した。

(2) さらにリニアックで発生した陽電子パルスのパルス幅を制御する技術として、リニアストレージ及びインダクションバンチャーを導入し陽電子パルス幅可変装置としての可能性を検討した。また損傷導入用のイオン加速器としては、最大加速電圧 150kV の中エネルギー加速器と最大加速電圧 3kV の低エネルギー加速器の 2 種類を使用して装置の拡張性について評価した。図 1 にこれらのビームラインの構成要素を示す。

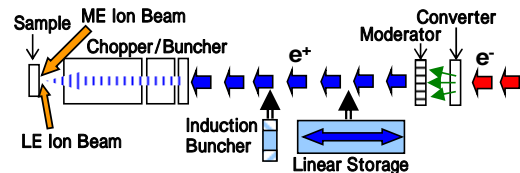


図 1 ビームライン構成要素

(3) 測定対象試料として、金属試料(純 Ni および純 Fe)と酸化 Si 試料(熱酸化 Si および溶融石英)を用いた。純金属試料は陽電子寿命と格子欠陥の関係が良く調べられており、酸化 Si については、ポジトロニウムが形成され、ポジトロニウム強度が各種の放射線損傷に依存することが分かっていることから、本研究の測定試料として選択した。

4. 研究成果

(1) イオン・陽電子複合ビーム分析装置の開発として高速波形デジタルと周辺回路の制御ソフトウェアの開発を行った。従来バルク陽電子消滅寿命測定に高速波形デジタルやデジタルオシロスコープが使われた例があったが、バルク測定では離散的に常に信号が発生するのに対し、本研究のリニアックベースのシステムの場合、消滅ガンマ線の信号は約 20 μs の間に集中して発生する。これを逃すことなく捕捉収集するため、電子リニアックの電子パルス発生を制御するマスターパルスに同期して高速波形デジタルを動作させる方法を取った。図 2 にそのようにして捕捉されたガンマ線消滅信号(BF_2 シンチレーション検出器の光電子増倍管出力信号)を示す。

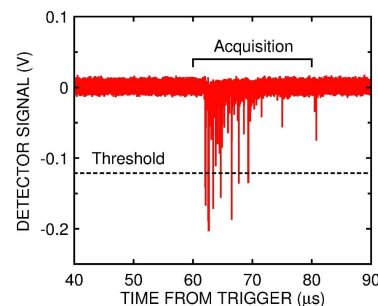


図 2 高速波形デジタルに捕捉された消滅ガンマ線信号。

実際の測定ではデータ取得のためのウィンドウ幅を 20 μs に設定し、サンプリングレートを装置最速の 4 GS/s (データ点の間隔 250 ps) として出来る限り高精度に信号を収集するようにしている。また、ガンマ線消滅信号と同時に陽電子のチョッパー信号を記録してそのピークの時間差から陽電子の消滅時間を計算している。波形解析をリアルタイムで行うため、データ処理プログラムとして C++言語で記述されコンパイルされたコードを使用している。そして陽電子寿命スペクトルの時間分解能と、ピークバックグラウンド比ができるだけ短くなるようにプログラムの最適化を行った。その結果、陽電子寿命スペクトルの時間分解能として 0.30 ns が得られた。測定スペクトルの例として、Si 基板上の厚さ 0.5 μm の熱酸化 Si 膜 (SiO_2 層) をエネルギー 3 keV の陽電子ビームで測定した結果を図 3 に示す。実線はスペクトル解析プログラムによるフィッティング結果である。

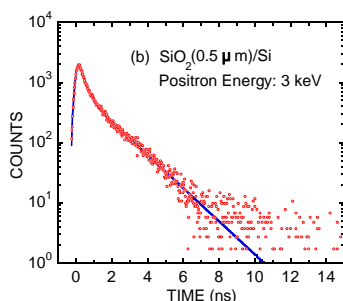


図 3 Si 基板上的熱酸化 Si 膜の陽電子寿命スペクトル。

開発された分析システムではイオンビームもチョッパー電極を用いてパルス化して試料に照射することが可能である。照射誘起欠陥の時間分解測定を行うため、電子リニアックで発生する陽電子ビームと同期してイオンビーム照射を行うための機能を制御プログラムに取り入れた。図 4 はイオンビームと陽電子ビームを同期して照射した例を示している。図 4 では #1 (イオンビームパルスの中央) と #2 (イオンビームパルス中央から 0.5 μs 後) に設定した例を示している。ここではイオンビームに対して陽電子ビームのタイミングを変えた形で表示しているが、実際には、陽電子ビームの照射時間は一定間隔であるため、イオンビームの照射時間の方を変えている。陽電子消滅信号は幅 20 μs の時間ウィンドウの中で測定しているため、このウィンドウ幅に相当した精度で、ポンププローブ的な測定が可能であることが示された。すなわちイオンビーム照射で欠陥を誘起 (ポンプに対応) し、陽電子寿命測定 (プローブに対応) が実現できる。

制御プログラムでは、試料や照射条件に応じて、短周期と長周期の二つのモードが使えるようにした。短周期モードでは、イオンビームのパルス 1 回に対し、陽電子ビームのパ

ルスが 1 回来るようにする。この場合、対象となる過渡変化の時間範囲は陽電子ビームのパルス間隔 (例えば 50 pps の場合 20ms) より短いものとなる。長周期モードでは、イオンビームパルスが 1 回来た後に、複数回の陽電子ビームパルスで測定を続ける。この場合には、対象となる過渡変化の時間範囲は、陽電子ビームのパルス間隔よりも長いものとなる。

陽電子のパルス幅制御を目的として、陽電子ビームラインに陽電子蓄積用ストレージセクションを挿入した。陽電子の蓄積をしない場合、試料上での陽電子パルス幅は約 20 μs であるが、数 10 μs オーダーの短時間の蓄積を行なった結果、パルス幅が 40 μs に広がり、陽電子蓄積用ストレージセクションが陽電子パルス幅制御にも使えることが示された。さらにインダクションバンチャーによる陽電子パルス制御装置による実験を行った。計算により求めた高周波変調波形とバイアス電圧をインダクションバンチャーに印加し、試料上に到達する陽電子の時間構造を調べた。その結果、連続的な陽電子ビームを、半値幅約 50ns のパルスに圧縮することができた。

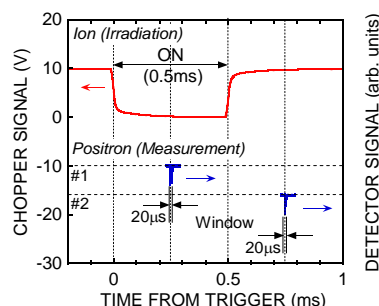


図 4 イオンビームと陽電子ビームの同期照射の例。

(2) 本研究ではイオンビーム照射下の照射誘起欠陥の過渡的な変化を観測することを目指している。その第一段階として、イオンビーム照射時と非照射時の差を見ることが重要である。このため、シリコン上の熱酸化膜と純 Fe に対する Ar イオンと陽電子の照射実験を行った。図 5 は Si 基板上的熱酸化 Si 膜に対する実験結果を示す。横軸は Ar のイオンの照射量で、縦軸は熱酸化 Si (SiO_2) の陽電子寿命スペクトルを取った時に観測される o-Ps (オルソポジトロニウム) 成分の強度である。一回目の照射から o-Ps 強度が顕著に低下し、やがて一定レベルに飽和する傾向が観測された。実験では照射 (ON) と非照射 (OFF) を交互に繰り返したが、ON 状態と OFF 状態の間で有為な差は見られていない。図 6 は純 Fe に対して同様の実験を行った結果である。この場合、グラフの縦軸は平均陽電子寿命である。平均陽電子寿命は照射量が増えるとともに減少するが、減少は一定の値で飽和する。これは未照射時には表面の寿命が反

映し、欠陥の導入とともに陽電子の拡散距離が低下して、表面の影響が出なくなったためと解釈できる。この図の場合も照射と非照射を交互に繰り返したが、ON 状態と OFF 状態の間で有意な差が出なかった。

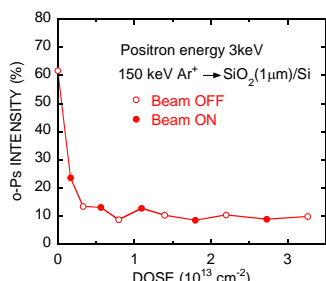


図5 イオンビーム照射下における熱酸化 Si 膜のポジトロニウム強度の変化。

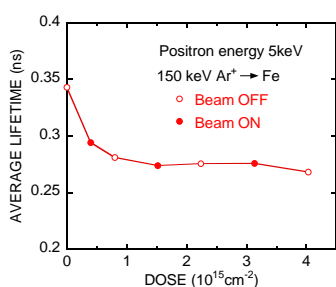


図6 イオンビーム照射下における純 Fe の平均陽電子寿命の変化。

図5と図6に示す実験はいずれも室温で行われた。室温では照射で誘起される点欠陥の拡散や回復の速度が小さく、欠陥の過渡的な挙動の観測は困難であると考えられる。このため、試料を室温以上に加熱し、600 までの範囲で照射実験を行った。様々な実験条件の中で、欠陥の過渡的な挙動が顕著に観測された例を図7に示す。純 Ni 試料に対して 500 で Ar イオン照射し、その際に試料表面近傍のポテンシャル分布を周辺の電極とそのバイアス電圧で制御した。この時、図7に見られように、主ピークから 5 ns 遅れた時間にサテライトピークが観測された。このサテライトピークはバイアス電圧に対する応答や、陽電子軌道シミュレーションより、表面から再放出された陽電子が試料に再入射した際に生じる消滅ガンマ線によるものと判断された。イオン照射を行いながらこのサテライトピークの強度を調べると、照射でいったん強度低下するが、照射をやめると強度が回復する傾向を示した。これは表面近傍に形成されて照射誘起欠陥が表面再放出陽電子の量を減らすものの、照射をやめると欠陥の回復により、再放出陽電子の量が増えるものと考えられる。この様な形で照射誘起欠陥の過渡的な変化が観測できることが本研究により初めて示された。さらに、イオンビーム照射を止めた後に複数回陽電子寿命測定を続けることにより、過渡的な変化の時定数を調べることができた。実際に、図7の照射条件では

683 秒という値が得られた。また石英試料の損傷導入速度の温度依存性を調べることににより、損傷形成の活性化エネルギーを調べることが可能であることも示された。

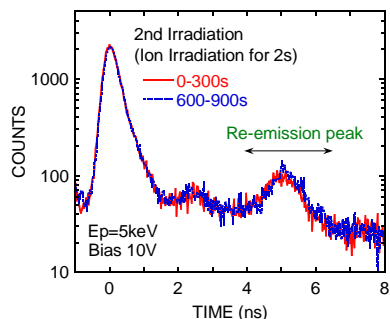


図7 純 Ni に対する Ar イオン照射で観測された再放出ピークとその過渡変化。

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 3 件)

A. Kinomura, R. Suzuki, N. Oshima, B.E. O'Rourke, T. Nishijima and H. Ogawa, Digitized Detection of Gamma-Ray Signals Concentrated in Narrow Time Windows for Transient Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy, Rev. Sci. Instrum., 査読有, 85 (2014) 123110-1 - 123110-5

DOI: 10.1063/1.4903754

木野村淳、岩井岳夫、土田秀次、陽電子ビームによる照射損傷その場分析装置の開発と応用、陽電子科学、査読有, 3 号 (2014) 27-36

<http://positron-science.org/kaiho/3.html>

A. Kinomura, R. Suzuki, T. Ohdaira, N. Oshima, B.E. O'Rourke and T. Nishijima, In-situ positron lifetime spectroscopy of radiation damage by simultaneous irradiation of slow-positron and ion beams, J. Phys.: Conf. Ser., 査読有, 443 (2013) 012043-1 - 012043-4

DOI: 10.1088/1742-6596/443/1/012043

[学会発表](計 25 件)

水野翔平、堤弘法、木野村淳、鈴木良二、土田秀次、伊藤秋男、パルス陽電子によるイオン損傷熱緩和の時間分解解析、日本物理学会春季大会、2015 年 3 月 21 日、早稲田大学早稲田キャンパス(東京都新宿区)

水野翔平、堤弘法、木野村淳、鈴木良二、間嶋拓也、今井誠、斉藤学、土田秀次、伊藤秋男、陽電子を用いたイオン照射効果の時間分解解析、フォーラム 21 -イオンビームを用いた物理とそ

の応用、2015年1月10日、大阪教育大学天王寺キャンパス(大阪府大阪市) H. Tsuchida, S. Mizuno, H. Tsutsumi, A. Kinomura, R. Suzuki and A. Itoh, Real-time observation of thermal relaxation of ion damage by synchronized positron probe analysis, 第15回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会, 2014年12月6日、筑波大学研究基盤総合センター(茨城県つくば市)

木野村淳、鈴木良一、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、土田秀次、イオン・陽電子複合ビーム照射における表面再放出と陽電子寿命の比較検討、京大原子炉専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」、2014年11月29日、京都大学原子炉実験所(大阪府熊取町)

木野村淳、鈴木良一、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、土田秀次、イオン・陽電子複合ビーム照射で検出されたNiの照射損傷の過渡変化、日本金属学会2014年秋期講演大会、2014年9月26日、名古屋大学東山キャンパス(愛知県名古屋市)

S. Mizuno, H. Tsutsumi, H. Tsuchida, A. Kinomura, R. Suzuki and A. Itoh, Observation of dynamic relaxation processes of ion damage in fused quartz, The International Workshop on Positron Studies of Defects 2014 (PSD-14), 2014年9月16日、京都大学吉田キャンパス(京都府京都市)

A. Kinomura, R. Suzuki, N. Oshima, B.E. O'Rourke, T. Nishijima, H. Ogawa and H. Tsuchida, Transient Measurement of Irradiation Damage by In-Situ Positron Lifetime Spectroscopy, The International Workshop on Positron Studies of Defects 2014 (PSD-14) (招待講演), 2014年9月18日、京都大学吉田キャンパス(京都府京都市)

水野翔平、堤弘法、土田秀次、木野村淳、鈴木良一、伊藤秋男、パルス陽電子プローブによる石英ガラスの照射損傷の緩和時間測定、日本物理学会2014年秋季大会、2014年9月7日、中部大学春日井キャンパス(愛知県春日井市)

木野村淳、鈴木良一、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、土田秀次、イオン・陽電子複合ビーム照射における陽電子寿命と再放出の測定、第51回アイソトープ・放射線研究発表会、2014年7月8日、東京大学弥生講堂(東京都文京区)

木野村淳、鈴木良一、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、土田秀次、イオン陽電子複合ビーム照射に

おける照射タイミングと陽電子寿命スペクトルの変化、日本金属学会2014年春期講演大会、2014年03月21日、東京工業大学大岡山キャンパス(東京都目黒区)

A. Kinomura, R. Suzuki, N. Oshima, B.E. O'Rourke, T. Nishijima, H. Ogawa and H. Tsuchida, Dual beam analysis system for in-situ positron annihilation spectroscopy of ion-irradiation induced defects, Japan-China Joint Workshop on Positron Science (招待講演), 2013年12月21日、産業技術総合研究所つくばセンター(茨城県つくば市)

木野村淳、鈴木良一、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、土田秀次、イオン・陽電子複合ビーム分析装置の開発と照射損傷その場分析、第14回「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会(招待講演)、2013年12月14日、神奈川大学横浜キャンパス(神奈川県横浜市)

木野村淳、鈴木良一、小林慶規、義家敏正、徐虫、佐藤紘一、陽電子計測で得た金属中のイオン照射損傷分布と計算及びTEM観察との比較、京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」、2013年12月13日、京都大学原子炉実験所(大阪府熊取町)

木野村淳、鈴木良一、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、土田秀次、陽電子再放出に着目したイオン・陽電子複合ビームによるその場分析、京都大学原子炉実験所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」、2013年12月7日、京都大学原子炉実験所(大阪府熊取町)

A. Kinomura, R. Suzuki, T. Ohdaira, N. Oshima, B. E. O'Rourke, T. Nishijima and H. Tsuchida, Positron lifetime spectroscopy of radiation damage by synchronized ion and slow-positron irradiation, 13th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques and Applications (SLOPOS13), 2013年9月16日、Technische Universitaet Muenchen (Muenchen, Germany)

H. Tsuchida, A. Kinomura, H. Tsutsumi, R. Suzuki and A. Itoh, Thermal stability of radiation defects in fused quartz under ion irradiation studied by real-time observations of positron lifetime spectra, 13th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques and Applications (SLOPOS13), 2013年9月16日、Technische Universitaet Muenchen (Muenchen, Germany)

- 木野村淳、鈴木良一、大平俊行、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、パルスイオンビーム照射に同期した照射損傷のその場陽電子寿命測定、第50回アイソトープ・放射線研究発表会、2013年7月4日、東京大学弥生講堂（東京都文京区）
- 金古岳史、林崎規託、大島永康、木野村淳、B.E. O'Rourke、鈴木良一、筒井拓朗、木村彰吾、渡邊智仁、上殿明良、インダクションバンチャーを用いた高効率陽電子ビームパルス化システムの開発、日本物理学会第68回年次大会、2013年3月29日、広島大学東広島キャンパス（広島県東広島市）
- 木野村淳、鈴木良一、大平俊行、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、イオンビーム照射下で測定されたその場陽電子寿命スペクトルの変化、日本金属学会2013年春期講演大会、2013年3月28日、東京理科大学大神楽坂キャンパス（東京都新宿区）
- 木野村淳、鈴木良一、大平俊行、大島永康、Brian E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、イオン・陽電子同時照射実験で得られたその場陽電子寿命スペクトルに関する考察、京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」、2012年12月15日、京都大学原子炉実験所（大阪府熊取町）
- 21 木野村淳、鈴木良一、大平俊行、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、小川博嗣、電子・イオン複合ビーム分析装置の測定系について、京都大学原子炉実験所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」、2012年11月30日、京都大学原子炉実験所（大阪府熊取町）
- 22 A. Kinomura, R. Suzuki, T. Ohdaira, N. Oshima, B. E. O'Rourke and T. Nishijima, In-Situ Analysis System to Detect Vacancy-Type Defects during Ion Beam Irradiation, 8th International Symposium on Swift Heavy Ions in Matters, 2012年10月24日、京都大学吉田キャンパス（京都府京都市）
- 23 木野村淳、鈴木良一、大平俊行、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、パルスビームによる陽電子寿命測定を用いたイオン照射損傷その場分析、日本金属学会2012年秋期大会、2012年9月18日、愛媛大学（愛媛県松山市）
- 24 A. Kinomura, R. Suzuki, T. Ohdaira, N. Oshima, B.E. O'Rourke and T. Nishijima, In-situ positron lifetime spectroscopy of radiation damage by simultaneous irradiation of slow-positron and ion beams, 16th International Conference on Positron Annihilation (ICPA-16), 2012年8月20, University of Bristol (Bristol,

UK)

- 25 木野村淳、鈴木良一、大平俊行、大島永康、B.E. O'Rourke、西島俊二、パルス陽電子ビームによるイオン照射損傷のその場分析、第49回アイソトープ・放射線研究発表会、2012年7月10日、東京大学弥生講堂（東京都文京区）

〔その他〕

ホームページ等

https://www.aist.go.jp/aist_j/aistinfo/aist_today/vol14_09/vol14_09_main.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木野村 淳 (KINOMURA, Atsushi)
京都大学・原子炉実験所・教授
研究者番号：90225011

(2) 研究分担者

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

(3) 研究分担者

オローク ブライアン (O'Rourke, Brian E.)
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：60586551

(4) 研究分担者

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・首席研究員
研究者番号：80357300

(5) 研究分担者

小川 博嗣 (OGAWA, Hiroshi)
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：60356699

(6) 連携研究者

大平 俊行 (OHDAIRA, Toshiyuki)
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：90356642

(7) 連携研究者

土田 秀次 (TSUCHIDA, Hidetsugu)
京都大学・工学（系）研究科（研究院）・准教授
研究者番号：50304150

(8) 研究協力者

西島 俊二 (NISHIJIMA, Toshiji)