

空孔型格子欠陥三次元イメージング技術

研究代表者 千葉大学大学院工学研究科 准教授 藤浪真紀

1. 緒言

固体に入射された陽電子は正の電荷であるために原子核からのクーロン反発力を受け、原子核が存在しない空孔型欠陥や表面に選択的に捕獲される。この陽電子特有の性質を利用して1960年代後半から、電子との対消滅で生じるガンマ線のドップラー広がりや、試料に入射してから消滅するまでの寿命を測定することによる空孔サイズの評価や空孔に偏析した不純物の分析などが行われている。このように陽電子は他の手法に代替できないプローブとして利用されてきた。

当初は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。そのためエネルギーの揃った単色の陽電子ビーム源の開発が望まれていた。1980年代に陽電子ビームの単色化に成功したことから固体表面第一層や任意深さの状態分析のためのプローブとして応用が広がった。

しかし、陽電子ビーム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従来数 mm に限られていた。そこで局所分析に展開するために陽電子をマイクロビーム化することが望まれていた。陽電子マイクロビーム形成の問題点は一次陽電子ビームの輝度の低さである。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、マイクロビームを得ることができるが、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。そのため、陽電子に対して仕事関数が負であるタングステンやニッケル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る陽電子をビームとする。こうするとビーム径が小さくなり、集束時の発散角が抑えられるので輝度が増強される。

本研究はこのような技術を駆使して陽電子プローブマイクロアナライザー (PPMA) を開発し、消滅 γ 線のドップラー広がりより空孔二次元分布を計測し、材料中空孔型欠陥の局所分析を行うことを目的としている。本報告では、装置の概要と歪みを加えた鉄鋼材料の空孔二次元分布を測定の結果について述べる。

2. 実験装置

2.1 輝度増強

図1に千葉大学・陽電子ビームラインの装置写真を示す[1]。陽電子源としては ^{22}Na が使用される。ここから放出される陽電子のエネルギー分布は 545 keV を最大とした白色である。白色陽電子の単色化は陽電子に対して負の仕事関数を示す金属を利用してなされる。それにはメッシュ状のタングステンが使用され、タングステンに入射された陽電子は内部で熱化後、拡散し、表面に戻ってきた陽電子は-3 eV の仕事関数の絶対値のエネルギーを持って真空中に放出される。この陽電子を 100 eV に加速することで単色の陽電子ビームを得ることができる。使用している ^{22}Na の放射能は 1.1 GBq ($1.1 \times 10^9 \text{ e}^+/\text{s}$) であり、減速材から再放出される割合は 10^{-4} 程度であるので $10^5 \text{ e}^+/\text{s}$ の強度の陽電子ビームが得られる。これは分光器で得られる $10^3 \text{ e}^+/\text{s}$ よりも遙かに高い効率での単色化である。陽電子は輸送コイルの作り出す 60 Gauss の静磁場に沿って輸送され、90 度曲げられたビームラインにおいて熱化されなかった高エネルギーの陽電子はビーム軌道から外れる。直線部に来た陽電子は 0.1 keV から 30 keV までの任意のエネルギーに加速される。

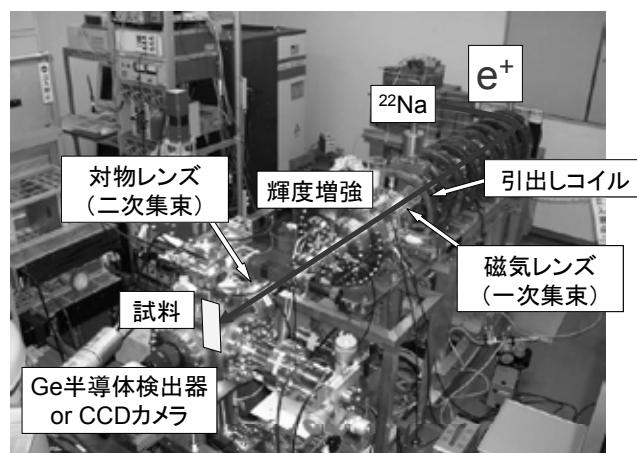


図 1. RI による陽電子ビームラインの装置写真

実用的な陽電子マイクロビームを生成するためには数 mm 径で $10^5 \text{ e}^+/\text{s}$ の陽電子ビームに対して面積を 10^4 分の 1 に縮小させながら、強度は数%程度に維持しなければならない。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。いわゆる輝度の保存であり、ビーム輝度 B は次式のように定義され、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。

$$B = \frac{I}{d^2 \theta^2 E} \quad (1)$$

ここで、 d はビーム径、 θ はビームの広がり角、 E はエネルギー、 I は強度である。如何にして損

失を抑え、輝度の高い陽電子ビームを輸送・集束させることができるかが重要である。その鍵となる技術が再減速材を用いた輝度増強法である。

2.2 装置の概要

本研究では汎用性の高いシンプルな光学系にするために、図2に示すような薄膜の透過型再減速材を用いた輝度増強装置を新たに開発した。陽電子ビームを集束させ、その焦点には再減速材を置く。入射された陽電子は熱化・拡散し裏面に到達したビームはその仕事関数の絶対値で法線方向に再放出される。これを加速することで、ビーム径を縮小した状態でビームの発散角を抑えることで輝度を増強することができる。さらに二次集束系においてビームを数十 μm までビーム径を縮小し、試料へ照射する。試料を二次元的に動かし、消滅ガンマ線を検出することにより局所分析を行う。以下に詳細を述べる。

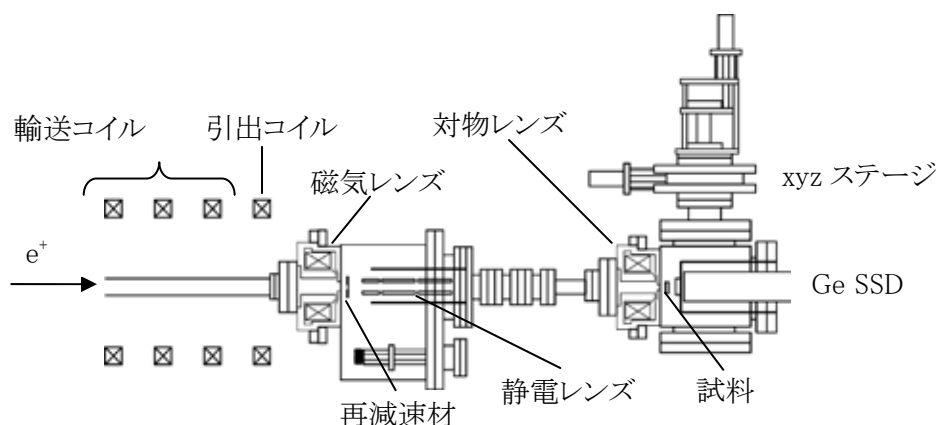


図2. 陽電子ビーム一次集束系と二次集束系

2.3 透過型再減速材

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、単色性が良いことである。また熱処理のしやすさや安定性、破れにくさも重要である。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 と小さいためにWの -3 eV よりもエネルギー広がり面で有利であるが、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、本研究ではエネルギー広がり面の狭窄化を優先して再減速材として厚さ 150 nm のNi(100)単結晶薄膜を採用した。

2.4 ビーム軌道シミュレーション

RI線源周辺は放射能が高いために、得られた単色の陽電子ビームは数mの距離を静磁場

で輸送されて利用される。陽電子をマイクロビーム化し制御するためには輸送磁場から切り離す必要がある。そのために輸送に使うヘルムホルツコイルの最終コイル(引出コイル)が作り出す磁場を弱くする,あるいは逆方向にすることによりビームを磁場から切り離す方式を採用した[2]。以上の方式の最適なレンズ配置を決定するために電磁場計算ソフトウェア POISSON と荷電粒子軌道計算ソフトウェア General Particle Tracer によりシミュレーションを行った。

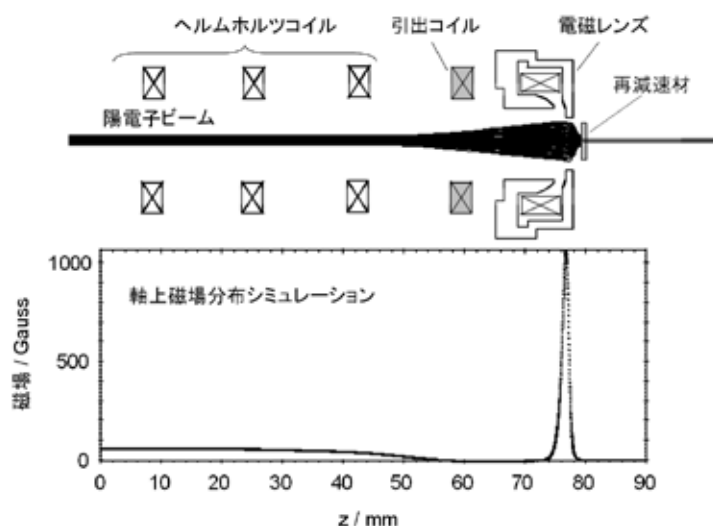


図3. 引出コイル方式による軸上磁場分布とビーム軌道シミュレーション

図3に典型的な軸上磁場分布とビーム軌道シミュレーションを示す。単色の陽電子ビームはヘルムホルツコイルが作り出す60 gaussの静磁場に沿って輸送される。引出コイルにより磁場が弱められ、それに伴いビーム径が広がるが、磁気レンズにより集束される。焦点の位置には透過型の再減速材が設置され、裏面から再放出された陽電子は発散角が抑えられる。この位置での残留磁場はゼロになっており、磁場からの切り離しが実現される。30 keVの陽電子ビームをワーキングディスタンス1 cmの電磁レンズで集束する場合、ビーム軌道シミュレーションから磁場輸送中のビーム径の1.5倍程度に広げて電磁レンズに導入すれば、最も高い縮小率が得られることが分かった。

2.5 検出部

輝度増強された陽電子ビームは任意のエネルギーに加速され、二次集束レンズ(対物レンズ)によりマイクロビーム化されて試料に照射される。陽電子は熱化するまでに μm オーダーの領域に広がり、電子と対消滅する。消滅ガンマ線はゲルマニウム半導体検出器により検出される。その信号はアンプにより増幅されてADCに入力され、PCに記録される。試料ホルダーはステッピングモータにより二次元的に動かすことができ、陽電子マイクロビームを試料に対して

二次元的に走査できる。

消滅ガンマ線のスペクトルの形状は試料の空孔サイズや密度を反映することから、511 keVの光電ピーク全体と中央部の面積の比であるSパラメータを原子空孔情報として利用できる。Sパラメータの上昇は空孔量やサイズの増加に対応しており、試料の二次元空孔濃度分布を求めることができる。

3. 結果と考察

3.1 一次集束

以上のシステムを用いて引出コイルによる磁場切離し、磁気レンズによる一次集束実験を行った。マイクロチャンネルプレート(MCP)を用い、集束ビームのビーム径および陽電子の計数率を測定した。15 keVのビームに対して引出コイルに輸送磁場と順方向の電流である1.8 Aを流した場合と逆方向の電流を流した場合の磁気レンズによる集束、発散のプロファイルを観測した。引出コイルの磁場が順方向である場合、磁気レンズにおけるビームの損失は無かった。それに対して引出コイルの磁場が逆方向である場合、磁気レンズの淵にビームが当たるために損失が生じた。

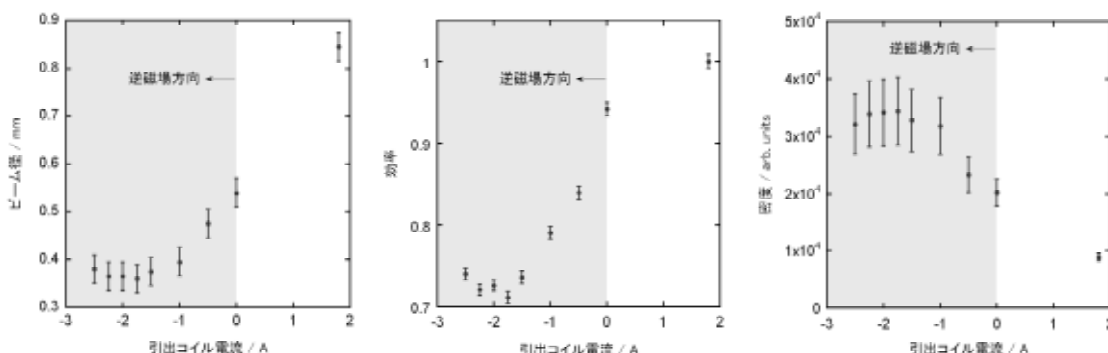


図 4. 最集束ビーム径, 効率, ビーム密度の引出コイル電流依存性

図 4 に最集束ビーム径, 効率, 密度の引出コイル電流依存性をそれぞれ示す。引出コイルの電流を輸送コイルとは逆方向に流し、ビームを広げて磁気レンズに導入する方がより集束され、電流が-1.75 A のとき最小値 360 μm になった。しかし逆方向に電流を流すとビームを広げるために、磁気レンズ内でのビーム損失が大きくなり、輸送効率が下がる傾向がある。効率的な集束という意味では、再減速材位置における集束陽電子ビームの密度が重要なので、輸送効率とビーム径からビーム密度が最大になる-2.0 A 付近が最適である。初期ビーム径が 4 mm なので、磁場切離しと一次集束における縮小率は約 10 となり、輸送効率は 70%以上を達成した。

3.2 再減速材の再放出効率

再減速材において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。図5にNi(100)に対する各エネルギーにおける陽電子注入分布を示す。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結果を図6に示す。この結果から入射エネルギーが5.5 keV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。

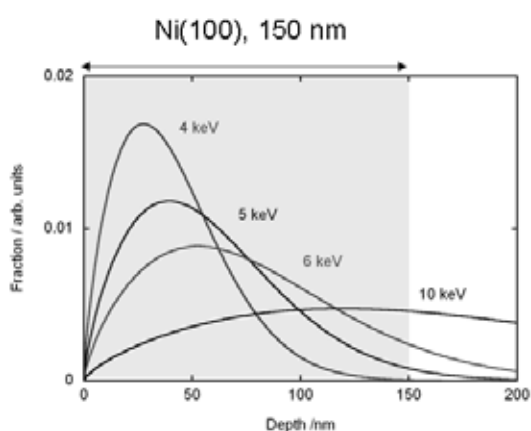


図5. Ni(100)の4, 5, 6, 10 keVに対する陽電子注入分布

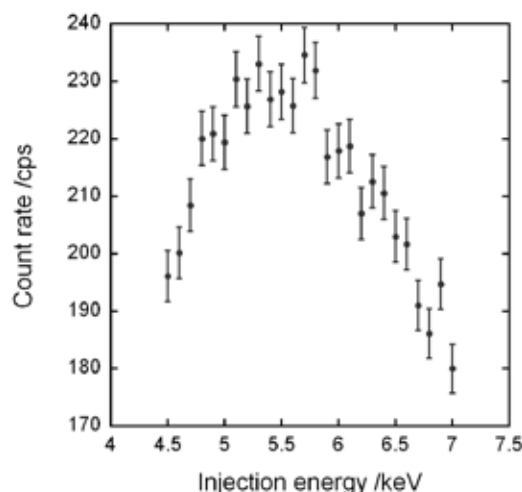


図6. 150 nm厚のNi(100)単結晶薄膜の裏面からの陽電子再放出量の入射エネルギー依存性

3.3 二次集束

以上の一次集束における輝度増強を経て、磁場フリーの静電レンズ系によりビームが輸送される。ビームの質を評価するために磁気レンズにより再びビームを集束してビーム径を測定した。実験条件としては再減速材への入射エネルギーが5.5 keVとなるように、15 keVの初期ビームに対してNi(100)単結晶薄膜の再減速材を9.5 keVに浮かした。従って裏面より再放出される陽電子は、9.5 keVにまで加速される。磁気レンズにより再びビームを集束し、MCPに

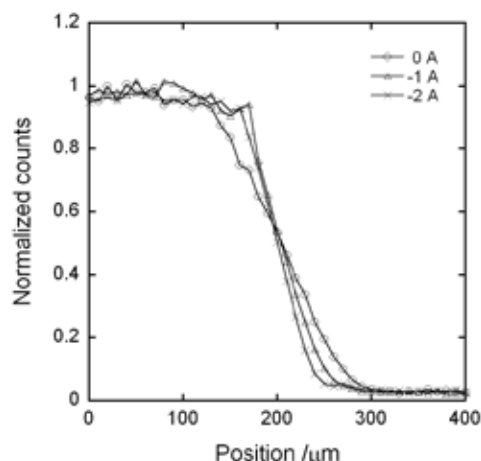


図7. ナイフエッジ法の一次元スキャンによる二次集束ビームのカウント数の変化。引出コイルの電流0, -1, -2 Aにおいて集束ビーム径のFWHMはそれぞれ125, 72, 60 μm

よりビームプロファイルを観測したが、ビーム径が MCP の分解能程度であったので、ナイフエッジ法により評価した。ナイフエッジの一次元スキャンにより陽電子カウント数の変化を図 7 に示す。この強度変化を微分することによりビーム径を評価した。一次集束系の引出コイルの電流を 0, -1, -2 A と変えた場合の集束ビームの FWHM はそれぞれ 125, 72, 60 μm であった。この結果からビーム径は引出コイルの電流に依存しており、即ち再減速材におけるビーム径で決まることを示している。再減速材でビーム径が最も小さくなる時、二次集束においてもビーム径が最も小さくなり、その大きさは 60 μm であった。

3.4 歪みを加えた鉄鋼材料に対する S パラメータ二次元マップの作成

このように得られた陽電子マイクロビームを陽電子プローブマイクロアナライザー (PPMA) として用いる応用例として、歪みを加えた鉄鋼材料を試料として用意した。試料はあらかじめ焼

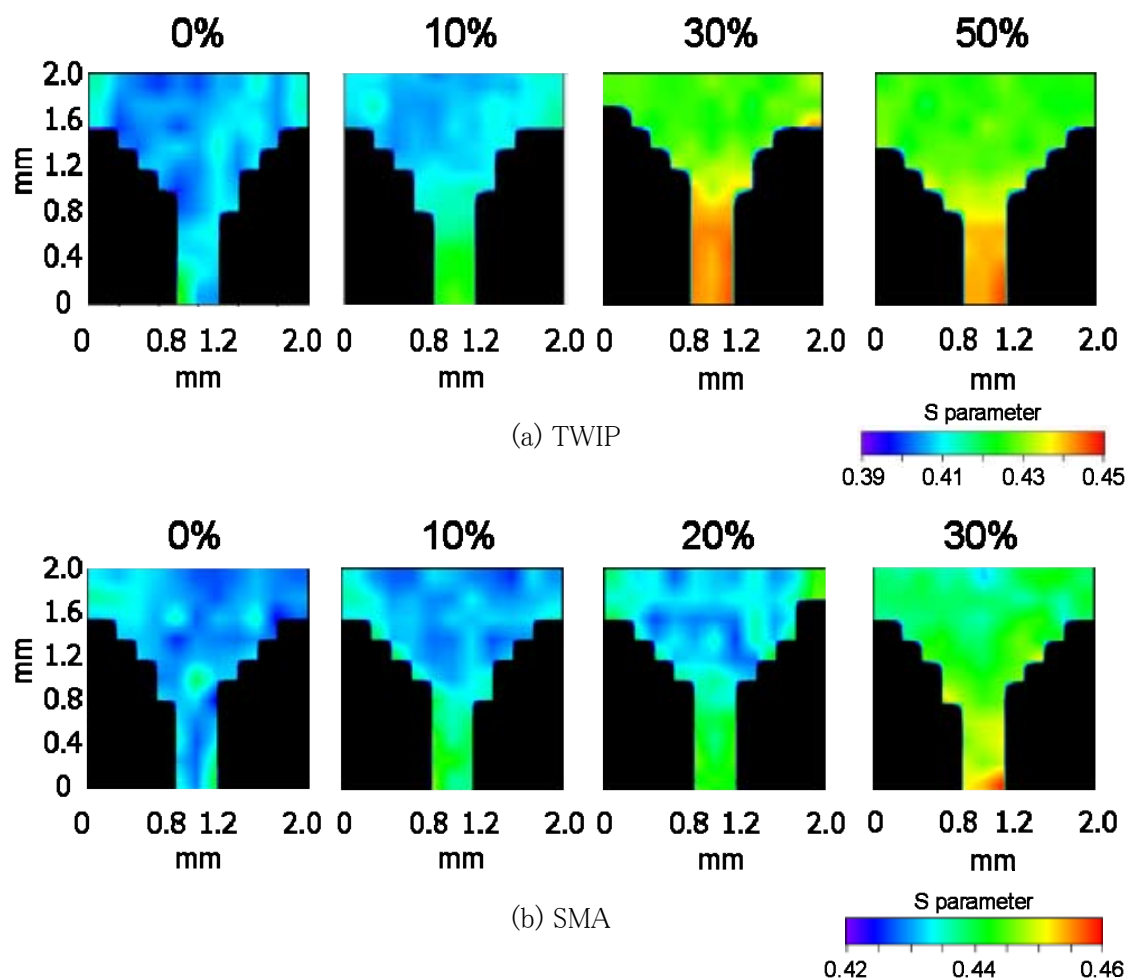


図 8. 歪みを加えた鉄鋼材料に対する S パラメータによる二次元マップ

鈍により欠陥を除去した二種類の鉄鋼材料(双晶生成誘起塑性変形鋼: TWIP(Fe-bal, Mn-27%, Si-4%, Al-2%), 形状記憶合金: SMA(Fe-bal, Mn-28%, Si-6%, Cr-6%))である。これらには引張試験機でそれぞれ異なるひずみを与えてある。これらの試料に 9.5 keV の陽電子マイクロビームを照射して消滅ガンマ線スペクトルを計測した。試料をビーム軸に垂直な面上を移動させることで、消滅ガンマ線スペクトルの二次元マップを得ることができる。測定点の間隔は 200 μm 各測定点における測定時間は 3000 秒である。

ひずみ量 0, 10, 30, 50%の TWIP と 0, 10, 20, 30%の SMA の S パラメータ二次元分布を図 8 に示す。各測定点における S パラメータを等高線で結んだものである。ひずみの増加に伴って S パラメータが増大していることが分かる。また, S パラメータが試料の幅の狭い部分から広い部分にかけての応力の違いに応じて変化する様子が明らかになった。これらは転位による物だと考えられる。

4. 結論

本研究により ^{22}Na を陽電子源とした PPMA を開発した。逆磁場方式による磁場切離しと透過型再減速材を用いたマイクロビーム形成技術により, 汎用性に優れた透過型の光学系を構築した。この装置を用いれば材料中の空孔型欠陥の二次元分布を取得することができる。PPMA の応用として, 鉄鋼材料の歪み導入により転位に伴う S パラメータの変化を測定し, その増加は変形部に顕著に現れた。以上のように加工・変形に伴う材料のひずみ評価や材料の特性に及ぼす空孔の影響といった新たな知見を得ることが期待される。

本研究は, JFE21 世紀財団研究助成金の支援を受けてなされたものである。

参考文献

- [1] M. Fujinami, S. Jinno, M. Fukuzumi, T. Kawaguchi, K. Oguma, and T. Akahane, Anal. Sci. **24**, 73 (2008)
- [2] N. Oshima, R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Kinomura, T. Narumi, A. Uedono, and M. Fujinami, J. Appl. Phys **103**, 094916 (2008)