

AD ALTIORA SEMPER UNIVERSITAS CHIBA つねに、より高きものをめざして

Chiba University

アウトライン



- 1. 陽電子消滅法の原理 基礎と原子空孔検出について
- 2. 原子空孔三次元分布計測装置の開発 Positron probe microanalyzer, PPMA
- 3. 透過型陽電子顕微鏡の開発 Transmission positron microscope, TPM
- 4. まとめ



(財)日本板硝子材料工学助成会(H17) JST先端計測分析技術・機器開発プロジェクト(H17-20)

TPM & PPMA

千葉大学:神野智史,岡壽崇,村谷孝博,川口拓未 物材機構:赤羽隆史

PPMA

產総研: 鈴木良一, 大平俊行, 大島永康, 小林慶規 筑波大学: 上殿明良, 鳴海貴允

TPM

日本電子: 松谷幸, 大塚岳志, 井上雅夫 帝京科学大学: 堂山昌男

KEK: 栗原俊一



1. 陽電子消滅法の原理



Positron, e⁺: 電子の反粒子, 電荷が正

陽電子の優位性:電子と比較して

- 原子空孔自己探索能
- ■負の仕事関数
- 高い最表面選択性(表面状態陽電子)
 回折・散乱挙動(交換相互作用フリー)



陽電子は電子と対消滅





陽電子は電子と対消滅

511 keV γ-rays

反平行方向に2本の511 keV γ線が発生

消える魔球・大リーグボール2号

固体物性への陽電子の応用

空孔検出はexclusive ●原子核(正電荷)からの反発 → 原子空孔Seeker → 電子との対消滅 単空孔からサブナノ空孔:量・サイズ・化学状態 コンプトン散乱やドハー ス・ファンアルフェン効果 ● 電子との対消滅 → 電子構造計測 フェルミ面の決定 との対比 ● 最表面への局在 → 荷電粒子として回折・散乱・励起 表面第一層検出 電子より有利 陽電子励起オージェ電子分光 低速陽電子線回折 反射型高エネルギー陽電子線回折 再放出陽電子顕微鏡 陽電子励起脱離分光 など







空孔のサイズ(単からサブナノ)・量・化学状態 検出濃度領域(10-7から10-3 /atom)





陽電子寿命ー空孔サイズ

陽電子寿命→電子密度を反映















純金属中や合金中の空孔挙動(熱平衡,非平衡) 電子線照射した純Fe中の空孔

③ 金属中微量不純物の効果(析出物検出) 原子炉圧力容器の鋼の脆化(1 wt% Cu in Fe)

■半導体中空孔および微量不純物との反応 Si半導体中空孔のCuゲッタリング

▣ 高分子材料の自由体積 気体分離膜

高純度鉄中の空孔挙動



500

600



Kuramoto et al., Mater. Sci. Forum, 105-110, 1225 (1992)



nm大の微小析出物の検出 三次元APで観察困難な領域

Fe-Cu系 0.5nm大のCuクラスターの検出



Fe965-Cu59での陽電子捕獲の シミュレーション結果

消滅ガンマ線プロファイルの変化 Cuクラスターの時効析出の様子



Nagai et al. PRB 61, 6574 (2000)



Si中の空孔によるCuのゲッタリング

空孔-Cu複合体を初めて検出







PPMAの原理と限界

陽電子マイクロビームを 試料上走査



陽電子源:パルス→寿命測定 DC →消滅γ線スペクトル測定 寿命測定が有利(空孔濃度,サイズの情報)



EPMAと同様入射陽電子の熱化過程での広がりに空間分解能は依存

→ 原理的にはサブミクロンが限界

世界における研究開発動向



1997年

① ミュンヘン防衛大学→ミュンヘン工科大へ装置移設(準備中)

パルス陽電子ビームで<u>原子炉による陽電子発生</u>の利用:ビーム径2 μm 1E7 e⁺/s台のビーム強度

1997年 ② ボン大学

> 微小線源をSEM(市販品)に接続:ビーム径10 μm 線源はRI, DCビームによる消滅γ線スペクトル測定

2007年

③ 原子力機構(高崎)

微小RI線源をSEM(市販品)に接続:ビーム径3 μ m? 実際の測定は10 μ m ボン大学のコピー

DCビームで消滅 γ線スペクトル測定であるが、パルス化を実施中



PPMAの課題



	陽電子源(²² Na∶RI) W減速材	電子銃(LaB ₆)
発生部径	10 mm	10 – 100 μm
エネルギー幅	0.1 eV	0.1-1 eV
強度(電流)	1-10 pA/cm ²	1 A/cm ²
磁場強度	5-10 mT or 0 mT	0 mT
規格化輝度	1E-15 – 1E-19	1

低輝度 → 数時間以内での測定 高強度源と新規光学系が必要

我々のマイクロビーム化への戦略



透過型

減速材

150 nm厚

Ni(100)

 e^+

€ e+

①初期強度の増加

RI(²²Na)利用 → Linac利用(制動放射X線による対生成)

ただしLinacでは陽電子を磁場輸送

1E5 e⁺/s → 1E7 e⁺/s台 産総研と高エネ研のビームライン

②新光学系:透過型輝度増強法

ビームを集束しつつ,広がり角を抑制 従来:輝度増強に反射型の光学系 → 光学系が複雑

透過型再減速材によるシンプルな静電光学系



M. Fujinami et al., Anal. Sci. 24, 73 (2008)

マイクロビーム化における オリジナリティー



 磁場輸送系からのマイクロビーム化法 高強度陽電子発生源(加速器や原子炉)に適用可能 RIビームにも利用可能であり高い汎用性技術

かつビーム調整容易な光学系

② 透過型輝度増強法の確立 光学系が非常にシンプル

低コスト,調整容易,開発期間短縮化された光学系

藤浪真紀, 顕微鏡, 43, 292 (2008)

産総研(加速器)のPPMA 産総研,千葉大,筑波大@産総研の陽電子ビームライン

陽電子寿命測定による原子空孔二次元マッピング









(消滅 ア線スペクトル形状のパラメーター)

産総研のパルス陽電子実験施設







本装置の特徴:測定時間の高速化 従来はRIビームで数日→2時間から12時間

	ー次ビーム	マイクロビーム化後
エネルギー	0.1~30 keV	3 ~ 25 keV
ビーム径	10 ~ 15 mm径	30 ~ 100 µm径
強度(計数率)	数万cps	1,500 cps
時間分解能	230 ps	280 ps

応用事例:イオン照射非晶質SiO₂

水素イオンビーム アルゴンイオンビーム (50 keV、10¹⁶ cm⁻²) (150 keV、10¹⁵ cm⁻²)



イオン照射欠陥が3次元的に導入



Positron energy: 5 keV 10^{0} 非照射 Ps形成 照射 長寿命 Intensity 1.04 ns 10-照射 非照射 照射 Ps抑制 Та 10^{-2} 短寿命 0.79 ns 0

Time (ns)





陽電子エネルギー:25 keV (平均注入深さ:約200 nm) ひずみ量 20% 1%

平均陽電子寿命 P-Fe HP-Fe (annealed) (as rolled 190 ps 210 ps 230 ps 250 ps 270 ps 290 ps 310 ps 1 mm

時間分解能:280ps ビーム径200-300micron ビームエネルギー:25keV 1画素測定時間:15秒 計数率:700cps







加速器ベースおよびRIベースのPPMAを開発

- ●数μmの空間分解能による原子空孔二次元分布, エネルギーを可変にして三次元分布を得ることができる
- ●加速器ベースでの測定時間は約3時間(従来の数十分の一)
- 陽電子寿命の時間分解能は280 ps

●応用先

金属材料強度、半導体異相界面、高分子不均一劣化など



金属材料での原子空孔分布検出







陽電子寿命測定:複合酸化物のカチオン,アニオン欠損の評価に利用可能



粒内あるいは粒間の組成・構造均一性の 評価にPPMAを応用できないか?

3. 透過型陽電子顕微鏡

Transmission positron microscope, TPM



マイクロビーム形成部 顕微鏡上部にある中二階床上に 設置されている

H20.4





Linac status: 44 MeV, 0.2 GeV·µA, 50 Hz





30 kV透過型陽電子顕微鏡の光学系



TPM & TEM 30 kV x80 for Au(100) 10 nm thick





Positron (1000 e⁺/s) 15 min exposure

Electron (3000 e⁻/s) 15 min exposure



TEM

Au薄膜 10 nm 127 µm Cuメッシュ (200 mesh) (高分子の支持膜)

H20. 4

陽電子と電子とでは結像レンズ系 で回転が逆になるため 🗋 確かに陽電子像

試料断面図

透過陽電子像 Au(100) 10 nm厚





MoS₂ (1.7 nm thick) TPM & TEM images





10時間測定

照射量を下げて3分測定

電子と遜色のない像が得られている。 10時間という長時間測定でも安定したビーム状態を保っている。



コントラストの差

		陽電子	電子		
Z		R _p	R _e	R_p/R_e	_ 試料薄膜を通過した粒子数
13	AI	0.97	0.82	1.18	R =
14	Si	0.85	0.63	1.35	
24	Cr	0.81	0.72	1.13	
28	Ni	0.66	0.53	1.25	
29	Cu	0.68	0.76	0.89	
79	Au	0.73	0.63	1.16	

一見すると陽電子で透過しやすい傾向があらわれている。
 → 電子と陽電子で照射・結像条件が若干異なることを考慮すべき。



Mottの微分散乱断面積





回折像 Au(100) 10 nm厚 TPM TEM



集束レンズ絞り(Φ1 mm) 対物レンズ絞り(Φ0.6 mm) 制限視野絞り(Φ0.3 mm)







電子

縦軸:対数

TPMの現状のまとめ



★3,000倍相当の透過陽電子像が取得できるまでにいたる。

- → 細胞等を観察には十分適用可能
- → 10時間以上の長時間測定でも安定して測定可。
- ★陽電子回折像の取得も達成した。電子と陽電子で回折スポット強度に差があるかもしれない?
- ★透過陽電子像と電子像の透過率を比較した。今回の条件では陽電子の透過性が高く見積もられたが、照射・結像条件で変化することも考えられ、理論との差があるのかを言うにはまだ早い?





陽電子マイクロプローブの形成法の開発

- 加速器利用による高強度陽電子ビーム
- 高効率磁場切離し手法
- ■透過型再減速材Ni(100)薄膜による輝度増強

世界唯一の装置



■ 陽電子プローブマイクロアナライザー→三次元原子空孔分布

Positron probe microanalyzer, PPMA

■ 透過型陽電子顕微鏡→透過陽電子像,回折像の電子との差 Transmission positron microscope, TPM

