

GENERATION OF SLOW POSITRON BEAM BY AN ELECTRON LINAC AND ITS APPLICATIONS

Ryoichi Suzuki^{1,A)}

A) National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

1-1-1 Umezono, Ibaraki 305-8568

Abstract

Positron has various unique properties, e.g., positive charge, annihilation with electrons, emission of annihilation gamma ray, positronium formation, etc. Furthermore, we can control the implantation depth by the use of slow (monoenergetic) positrons. Using these unique properties, we can obtain valuable information on surface and subsurface regions. In recent years, generation techniques of intense slow-positron beams have been developed in several electron LINAC facilities, and those beams have been applied to materials characterization. In this article, we discuss slow-positron generation and control techniques as well as characterization techniques for advanced materials.

電子リニアックを用いた低速陽電子ビームの発生とその物質科学への応用

1. はじめに

電子の反粒子である陽電子は、物質中に入ると熱エネルギー程度に減速（熱化）・拡散・欠陥へのトラップ・電子との消滅・線の放出などの特異な相互作用をする。これらの性質を利用して各種の物質の微視的構造や表面状態などの物性を調べることができる。

特に、低速(単色)の陽電子は、試料への入射エネルギーを変えることによって入射深さをコントロールでき、高機能材料で重要な薄膜や表面近傍のプロブとして利用できる。また、エネルギーの低い陽電子は物質最表面の電子と相互作用する確率が高く、表面状態を調べるプロブとしても利用できる。これらの測定を実現するには低エネルギーで強度の高い陽電子源が必要であるが、近年、加速器などによって強度が高く物性測定に適した低速陽電子ビームが手に入るようになってきた。

本報告では、産総研の電子リニアックによる高強度低速陽電子ビームの発生・制御と、この低速陽電子ビームを用いた材料評価について紹介する。

2. 電子リニアックによる低速陽電子の発生・制御

2.1 低速陽電子の発生

産総研では、多目的電子加速器TELLの低エネルギー分岐の電子ビーム（図1、エネルギー70 MeV、パルスレート100 pps、平均電流10 μ A）をタンタルに入射し、タンタル内で制動放射X線から対生成

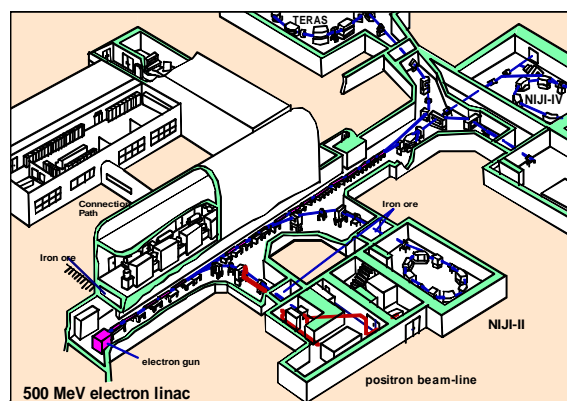


図1.産総研電子加速器施設と陽電子ビームライン

により陽電子を発生させている（図2）。この陽電子をタンタルコンバータ直後の陽電子減速材（タングステン）に入射すると、タングステンでは再放出現象により陽電子が数eVで再放出されるので、これをビームラインに引き出す。この低速陽電子を0.01T程度の磁場で真空中を測定装置まで輸送する。この陽電子ビームラインでは、測定装置のあるビームライン先端部で最大 10^8 個/秒の低速陽電子ビームを得ることができる。

この低速陽電子ビームラインは、1987年に低速陽電子の発生に成功し^[1]、その後長期間にわたって使用してきたが、これまでに何度か低速陽電子の発生効率の低下が生じた。この原因を調べたところ、タ

¹ E-mail: r-suzuki@aist.go.jp

ングステン減速材表面への炭素の堆積と、中性子による原子空孔欠陥の生成が原因として予想された。図2のように入射し散乱した電子ビームの一部がタングステン減速材に入る方式では、タングステンの温度が上昇し、タングステン内部の炭素が拡散により表面に偏析すると考えられる。また、超高真空中では、ガス中の炭化水素が電子ビームによって解離し炭素が表面に堆積する可能性もある。これらの炭素の堆積を抑えるため、極少量の酸素ガス(分圧で 10^{-7} Pa程度)を減速材チャンバーに導入したところ、低速陽電子の生成効率の低下を抑えることができた。また、タングステン減速材は高温になるとポジトロニウム形成が主となり、減速効率が低下するが、酸素ガスの導入により数百度まではポジトロニウム形成を抑制でき、減速効率の低下を抑えることができる^[2]。

この陽電子ビームラインは、放射光リングとの共用であり、電子加速器は陽電子ビーム発生に最適化されていない。そこで、現在Cバンド加速器を用いた陽電子ビーム発生専用電子リニアックの開発を進めている。

2.2 低速陽電子ビームの準直流化

前述のように電子加速器TELLはパルス幅 $1\mu\text{s}$ 、パルスレート100 ppsで動作するため、発生する陽電子は電子ビームと同じ低デューティのパルスビームである。このビームを直接測定室まで輸送するとピーク強度が高すぎて検出器が飽和してしまうことから、パルス幅を広げて準直流的なビームにする機構を陽電子ビームラインの中に設置している。この準直流化機構は4 mのビームライン直線部の両端にグリッド電極をつけた構造になっており、陽電子パルスがこの直線部に入った時に両端の電位を上げて陽電子を閉じ込め、その後出口の電極を除々に下げて陽電子を除々に出すことによって準直流(あるいは脈流)的なビームを得る^[3]。図3は、この準直流化機構を動作させた時の検出器の出力波形であり、1マイクロ秒のパルス幅が8 ms以上に広がっている。これによって、検出器の飽和無しに様々な計測に利用することができる。

2.3 低速陽電子ビームの短パルス化

陽電子の寿命測定や飛行時間測定を行う場合、陽電子が試料に入射した時刻を知る必要がある。低速陽電子ビームが試料に入射した時刻を知る方法としては、入射した時に出る二次電子を測定する方法と、低速陽電子ビームを短パルス化する方法とがあり、筆者らは分解能を上げることが可能な短パルス化法を用いている^[4]。低速陽電子ビームの短パルス化法は図4のように、陽電子ビームを5 ns程度にチョッピングするチョッパー及びチョップしたパルスを時間的に圧縮するバンチャーからなり、約300eVの陽電子ビームを約100 psまで短パルス化できる。

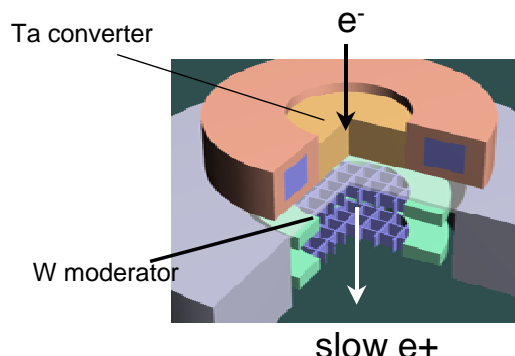


図2. 陽電子コンバータ・減速材部

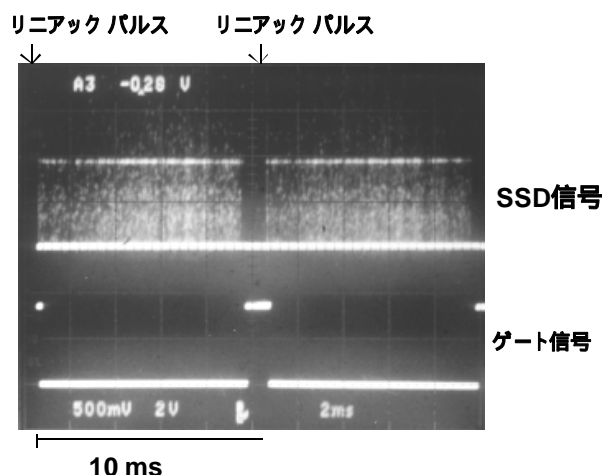


図3. 準直流化後の陽電子ビームの半導体検出器(SSD)による観測波形(上)と測定のゲート信号波形(下、low レベルがアクティブ)。

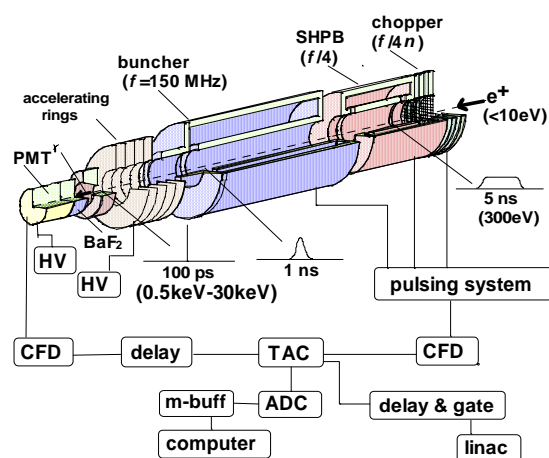


図4. 陽電子短パルス化システムと陽電子寿命測定装置

このパルス信号と消滅線の信号との時間差を計測することによって物質中の陽電子寿命を測定することができる。消滅線は、BaF₂シンチレータと高速の光電子増倍管により検出する。BaF₂は、紫外域のシンチレーション光成分の減衰時間が短く線のタイミング計測に適している。この紫外光を検出するため、石英窓を有し高速応答型の光電子増倍管を用いている。この光電子増倍管の信号をコンスタントフラクションディスクリミネータ(波形弁別器)に入力して消滅の時間を計測する。時間分解能は、主にシンチレータのサイズによって決まっており、5cm x5cm厚のシンチレータを用いる場合は200ピコ秒程度の時間分解能が得られる。

図4の装置では、パルス陽電子ビームのエネルギーは300eVであるが、試料に印加する電位を変化させることにより、0.3keV~30keVまで入射エネルギーを変化させることができる。この入射エネルギーにより、図5のように陽電子が試料に入る深さを変えることができる。これによって、薄膜や表面近傍の陽電子寿命測定が可能になる。

3. 低速陽電子ビームを用いた材料評価

3.1 入射エネルギー可変陽電子寿命測定

前述のように陽電子は入射エネルギーによって入射深さを自在に制御できることから、短パルス化した陽電子ビームを試料に入射し消滅時に放出されるガンマ線の消滅時刻を測定すれば、ある特定の深さの陽電子寿命を測定することができる。陽電子の寿命は、陽電子が正の電荷を持つため原子核から反発を受け、原子核の無い原子空孔に捕獲されやすい。原子空孔では電子密度が低いために陽電子の消滅するまでの寿命が長くなり、陽電子の寿命は原子レベルの空孔のサイズを反映する。また、絶縁体や表面などでは電子と陽電子が束縛状態を形成しポジトロニウム(Ps)となる場合が多い。このPsにはpara (p)とortho (o)の2つのスピン状態が存在する。o-Psは、真空中では142ナノ秒の寿命で主に3光子消滅するが、空孔内では空孔の壁の電子とピックオフ消滅し寿命が短くなる。この寿命は、空孔の壁との相互作用の頻度に依存することから、空孔のサイズを反映する。これらを利用すれば、電子顕微鏡などでは見ることの難しい原子レベル~ナノレベルの空孔を調べることができる。

図6は、図4の装置で得られた次世代LSI用低誘電率絶縁膜(ポーラスlow-k膜、膜厚約1マイクロメートル)の陽電子寿命スペクトルである。low-k膜はプラズマCVD法によって作成したものである。この寿命は前述のように空孔・空隙のサイズを反映しており、CVD成長膜ではサブナノ~1ナノメートル前後の空孔が形成し、成長条件によって空孔のサイ

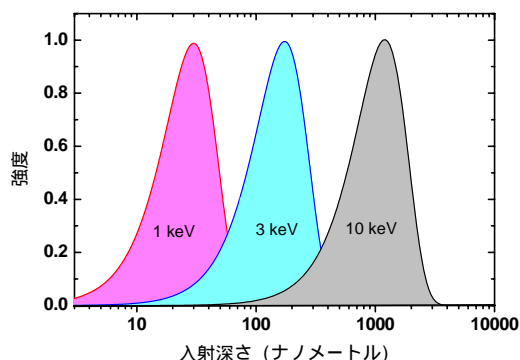


図5. 陽電子の入射深さ分布 (入射エネルギーが1 keV, 3 keV, 10 keVの場合)

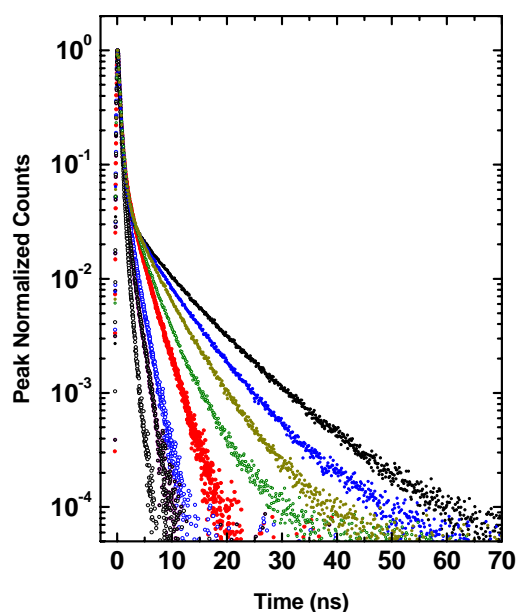


図6. CVD成長ポーラス膜の陽電子寿命スペクトル

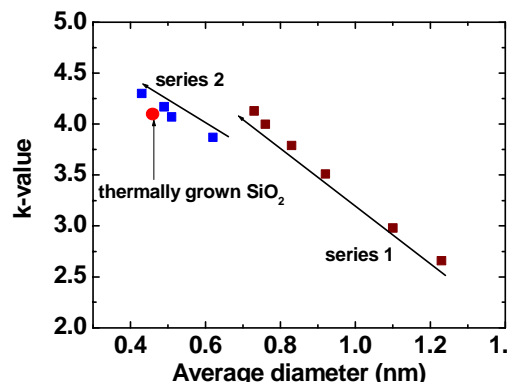


図7. CVD成長ポーラス膜の平均孔径と誘電率の相関

ズが変化していることがわかる^[5]。CVD成長の膜では、図7のように陽電子寿命から求めた平均空孔サイズと誘電率との間に相関があり、空孔が誘電率等の物性を決めていることが示唆される。また、図7にこれまでLSIの配線材料として使われてきたSiO₂膜中の空隙の点も示しているが、CVD成長ではSiO₂よりも小さな空隙の膜も成膜できることがわかる。このような小さな空隙を有する膜は、LSI中の絶縁膜問題となる銅の拡散を抑えることができると示唆され、実際に銅の拡散実験を行った結果、確かに銅の拡散に対するバリア性が高いことが実証されている^[6]。

この空孔構造についてより詳しい評価を行うため、産総研では、前述の陽電子寿命測定法を拡張して陽電子の寿命と運動量（線のドップラーシフト）の2次元相関スペクトルを測定する寿命・運動量相関測定（Age-Momentum Correlation, AMOC）法^[7]及びシンチレーション検出器の信号を2つに分岐し、陽電子の寿命と同時に検出器の波高（消滅線のエネルギー）を測定し2次元スペクトルを得る陽電子寿命・波高2次元測定法^[8]を開発した。

ナノ空孔が連結し表面で開放しているとo-Psが連結空孔を表面まで拡散して真空中に放出される場合があるが、このo-Psは前述のように真空中では主に3光子消滅をする。一方空孔中では、空孔表面の電子とのピックオフ消滅による2光子消滅が多い。この3光子消滅の割合は、検出器の波高スペクトルから計算できる。陽電子寿命・波高2次元測定では、波高スペクトルの消滅時刻依存性を測定することから、この測定により3光子消滅の割合の消滅時刻依存性が得られる。図8は、スピン塗布法により成膜した低誘電率ポーラス絶縁膜の陽電子寿命・波高2次元スペクトルである。このスペクトルは、消滅時刻がゼロ付近では、511keVの2光子消滅のピークが見られるのに対し、50ナノ秒以降は明瞭な2光子消滅

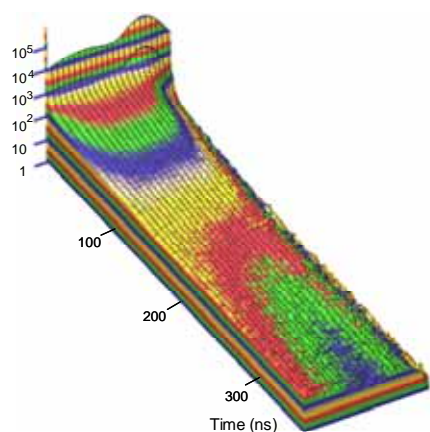


図8. ナノ空孔の連結・開放性が高い資料の陽電子寿命・波高2次元測定スペクトル

滅のピークが見られず、ほとんどのo-Psが連結・開放した空孔を通り、真空中に放出後に消滅していることを示している。これにより、この試料のナノ空孔は連結・開放性が高いことがわかる^[8]。

3.2 飛行時間型陽電子消滅励起オージェ電子分光

低エネルギーの短パルス陽電子ビームは飛行時間測定による表面分析にも用いることができる。我々は、陽電子消滅励起オージェ電子分光 (Positron annihilation-induced Auger Electron Spectroscopy, PAES) に短パルス陽電子ビームを用いた飛行時間法を適用した^[9]。PAESは、図9のように陽電子の内殻電子との消滅を利用することによって他のオージェ電子分光法等と異なり測定するオージェ電子よりも低いエネルギーで陽電子を入射できることから、表面感度が高い、ダメージが無い、2次電子等によるバックグラウンドが少ないといった優れた特徴を有している。

産総研では、電子加速器で発生した高強度の短パルス陽電子ビームを用いて従来のPAES装置よりも高い計数率、分解能で、元素分析を行うことのできる飛行時間分析型(TOF)PAES装置を開発した^[10]。この装置は、陽電子ビームを約40eVの短パルス陽電子ビームとして試料に入射し、減速飛行管を用いた飛行時間分析法と磁場による電子の平行化法の併用により、高効率でしかもエネルギー分解能の高いスペクトルを得ることができる。

図10は、Si(100)清浄表面に摂氏-80度において10⁻⁸ Torrの分圧の酸素ガスを導入した時のPAESスペクトルの時間依存性をプロットしたものである^[11]。この程度の酸素量の場合、電子励起によるオージェ電子分光では、酸素ピーク強度が弱く測定が難しい。これに対して、PAESでは、陽電子が表面のイメージ

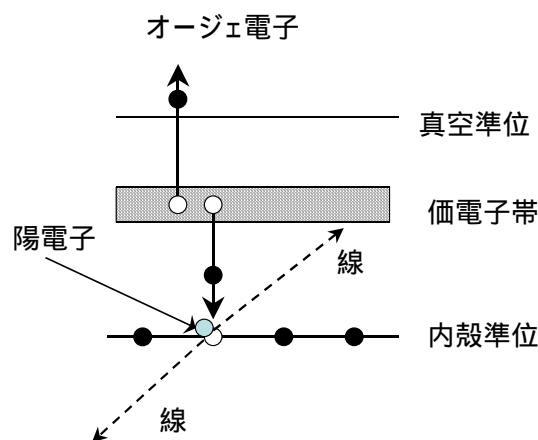


図9. 内殻電子と陽電子との消滅によるオージェ電子の放出

ポテンシャルに捕獲されて表面を動き回った後に消滅することから、酸素のような最表面の不純物に対する感度が極めて高く、図のように分オーダーで変化する最表面の動的な現象も観測できる。この測定法は、物質最表面における酸化などの初期過程の研究に有用である。

4. まとめ

電子加速器等を用いることにより、様々な測定に利用可能な強度の高い低速陽電子ビームの発生が可能になった。この高強度低速陽電子ビームは、短パルス化することにより陽電子の寿命や飛行時間測定が可能である。陽電子寿命測定では、陽電子の入射エネルギーを変えることで微細な空孔などの構造の深さ依存性などを調べることができる。短パルスビームを用いた飛行時間測定では、陽電子消滅励起のオージェ電子を観測でき、従来のオージェ電子分光測定を超える表面感度で物質再表面を調べること

ができる。現在、陽電子専用加速器による陽電子ビームの発生とマイクロビーム化の研究を進めており、マイクロビーム化が実現すれば、さらに応用範囲が広がるものと期待される。

参考文献

- [1] T. Mikado, R. Suzuki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, N. Hayashi, T. Tomimasu, S. Tanigawa, T. Chiba, T. Akahane, N. Shiotani Proc. 3rd Japan-China Joint Symp on Accelerators for Nuclear Science and Their Applications (1987) pp.163 ~ 165.
- [2] R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Uedono, Y.K.Cho, S. Yoshida, Y. Ishida, T. Ohshima, H. Itoh, M. Chiwaki, T. Mikado, T. Yamazaki, S. Tanigawa Jpn. J. Appl. Phys. 37, (1998) pp.4636 ~ 4643.
- [3] T. Akahane, T. Chiba, N. Shiotani, S. Tanigawa, T. Mikado, R. Suzuki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, T. Tomimasu, Appl. Phys. A 51(1990) pp.146 ~ 150..
- [4] R. Suzuki, Y. Kobayashi, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, T. Tomimasu, Jpn. J. Appl. Phys. 30 (1991) pp.L532 ~ L534.
- [5] R.Suzuki, T.Ohdaira, Y.Shioya, T.Ishimaru, Jpn. J. Appl. Phys. 40 (2001) pp.L414 ~ L416.
- [6] T. Ishimaru, Y. Shioya, H. Ikakura, M. Nozawa, S. Ohgawara, T. Ohdaira, R. Suzuki, K. Maeda, J. Electrochemical Soc. 150 (2003) F83 ~ F89.
- [7] R.Suzuki, T.Ohdaira, T.Mikado, G.Venugopal Rao, Materials Science Forum, 363-365 (2001) pp.661 ~ 663.
- [8] R.Suzuki, T.Ohdaira, Y.Kobayashi, K.Ito, R.S.Yu, Y.Shioya, H.Ichikawa, H.Hosomi, K.Ishikiriyama, H.Shirataki, S.Matsuno, J.Xu, Materials Science Forum, 445-446 (2004) pp.224 ~ 228.
- [9] R. Suzuki, T. Ohdaira, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, Appl. Surf. Sci. 100-101 (1996) pp.297 ~ 300.
- [10] T.Ohdaira, R.Suzuki, T.Mikado, H.Ohgaki, M.Chiwaki, T.Yamazaki, Appl. Surf. Sci. 116 (1997) pp.177 ~ 180.
- [11] T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado, Materials Science Forum, 363-365 (2001) pp.542 ~ 546.

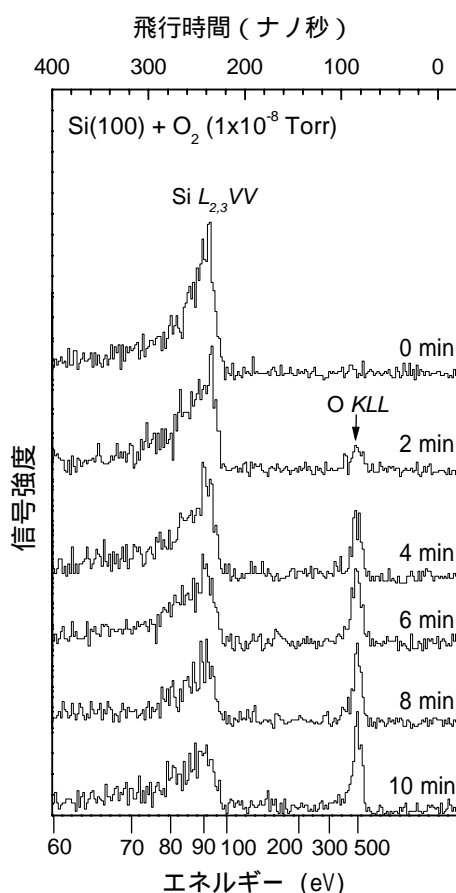


図10. Si(100)表面に1x10⁻⁸ Torrの分圧の酸素を導入した時のPAESスペクトルの時間変化