

# 電子線型加速器ベース低速陽電子ビームによる 陽電子寿命測定システムの開発

田代 睦、誉田義英、寺島孝武、宮本浩次、島田 巧、田川精一

大阪大学産業科学研究所

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 8-1

## 概要

高分子薄膜中のナノ空孔評価等を行うため、阪大産研 S バンド電子線型加速器から得られる高強度の低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定システムの開発を行った。陽電子寿命測定を行うため、ビームの準連続化、チョップ、バンチを行い、低エネルギー(数百 eV)で必要な時間分解能(300ps)と十分な計数率を持つシステムを構築した。その現状について述べる。

## 1 はじめに

低速陽電子ビームは薄膜材料の極微構造評価に有力なツールである。陽電子寿命を測定することにより高分子材料のナノ空孔サイズの非破壊評価が可能である等のメリットがあるためである。薄膜材料中での陽電子寿命を測定するため、我々のグループでは阪大産研の S バンド電子線型加速器から発生した高強度の低速陽電子ビームの短パルス化を進めてきた。測定室において建設された低速陽電子ビームラインを図 1 に示す。陽電子の寿命値から要求される時間分解能は数百ピコ秒程度であるため、バンチの時間幅も同程度にしなければならない。発生部から得られる陽電子は、電子線形加速器の特性上、 $\sim 2 \mu\text{s}$  のパルス幅で繰り返し 30 pps であり、 $\sim 1 \text{ keV}$  の輸送エネルギーで  $\sim 440 \text{ eV}$  のエネルギー拡がりを持っている。エネルギー拡がりを抑えるため、これまで磁場中再放出装置を導入して更なる低速・単色化を行い[1]、 $\sim 5 \pm 2 \text{ eV}$  のエネルギーで輸送している。このビームを用いてバンチを行うため、電極類の設計や時間幅の評価を行い、実際に装置を組み上げ実験を行った[2-7]。装置は陽電子蓄積部およびバンチング部から構成されている。陽電子蓄積部で陽電子を貯め込み準連続ビームを形成し、その後任意波形発生器から得られる波形を増幅して電極に与え、陽電子を時間的に収束させている。これらの現状や問題点などについて以下に述べる。

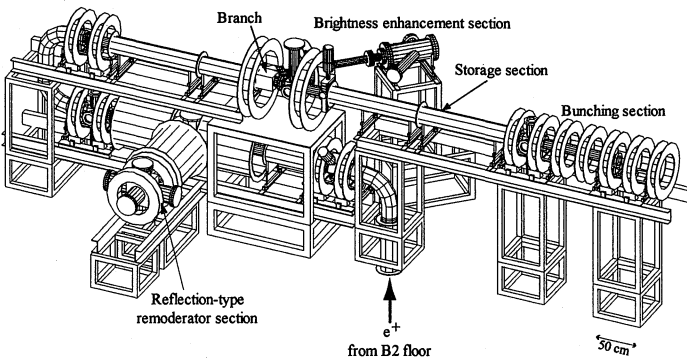


図 1: 測定室の低速陽電子ビームライン

## 2 陽電子蓄積・準連続ビーム化

陽電子発生部から得られる低速陽電子ビームは、上述のように  $\sim 2 \mu\text{s}$  のパルス幅で繰り返し 30 pps であり、磁場中再放出装置を導入して低速・単色化を行い、 $\sim 5 \pm 2 \text{ eV}$  のエネルギーで輸送している。これをそのまま短パルス化することは、エネルギー拡がりや計数率の面からも現実的でなく、目的の時間分解能を得ることはできない。そこで、図 2 のシステムに示すように、陽電子蓄積部で陽電子を貯め込み準連続ビーム化を行った。これによるメリットは、原理的には陽電子のエネルギー拡がりを更に抑えることができ、後で行う短パルス化においてパルスの時間幅を縮小するのに有効となることである。もう 1 つのメリットは検出器による放射線の飽和を抑え、計数率を大幅に向上できる点である。実際、この方式で実験を行ったところ、元々  $\sim 2 \mu\text{s}$  の幅の陽電子を 15-30 ms 程度まで引き伸ばすことに成功した。元々のビームが 30 pps であることから、この程度準連続ビーム化できれば十分であると考えられる。

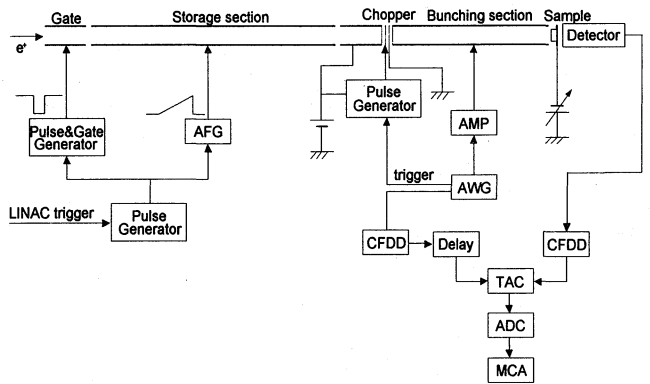


図 2: 陽電子寿命測定システム

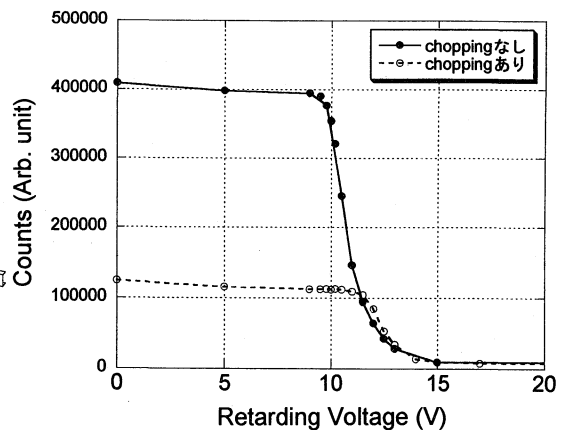


図 3: 準連続化したビームのエネルギー広がり  
の積分分布

これまでの短パルス化において時間分解能が予想よりも大きい原因として、準連続化したビームのエネルギー広がりがかえられてきた。結局この解決には至っていないが、さらにバンチングの直前で行われるチョッピングによる劣化を確認するため、バンチ電極に追いつき電圧をかけることによってビームのエネルギー広がりを測定した。ちなみに蓄積部出口の電極は 10 V であるので、準連続化したビームのエネルギーは 10 eV 程度となるはずである。図 3 に計測結果を示すが、チョッピング波形の電圧は 12 V を基準にしているため、それ以下の陽電子がかなり取り除かれていることがわかる。また、12 V 周辺で白丸が黒丸を上回っている部分が見られるが、これがチョッピングによって陽電子のエネルギーが乱されている結果と考えられる。

### 3 陽電子ビームの短パルス化

準連続化されたビームはその直後チョッピング、バンチングが行われることにより、試料部で時間空間的に収束されバンチが形成される。バンチングは接地されたメッシュと 1 mm 離れたバンチ電極前面に張られたメッシュとの間に時間的に変動する電場を与えて陽電子の速度変調を起こさせ、試料部で時間空間的に収束されるように行われる。この時、バンチ電極に与えられるべき理想的な電圧  $V(t)$  は以下の式で与えられる。

$$V(t) = -\frac{mL^2}{2et^2} + E_0 \quad (1)$$

ここで、 $m$  と  $e$  はそれぞれ陽電子の質量と電荷、 $L$  は試料部までの距離、 $E_0$  は陽電子の初期エネルギーであり、 $t(<0)$  は試料に収束される時間を 0 としている。以前は上式で表される理想曲線とそれをつなぐサイン波を任意波形発生器(AWG; Sony-Tektronix AWG510, 1 GS/s, 2 V / 10 bit)で発生させていた。しかし、周波数を高くしていくと帯域のミスマッチが起こるので、伝送回路中で波形が歪むことを利用し、AWG ではサイン波形を発生させ、その後増幅器(AMP; Thamway T145-5527C, 300 kHz - 50 MHz, 300 W)を通してバンチ電極に与えられた波形を受動プローブでモニターし、理想曲線と一致する部分をバンチングに利用するように、バンチ電極のオフセット電圧、チョッピング波形のタイミングを調整した(Pulse Generator; AVTECH AVM-3-C-M1, 150 ps rise time, 15 V, 10 MHz)。モニターしたバンチ電極での波形を図 4 に示す。

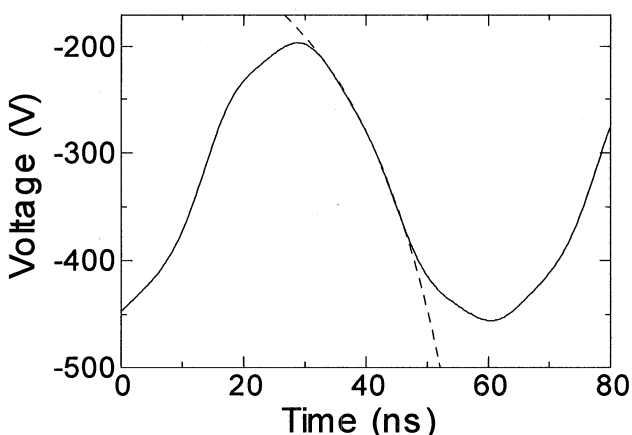


図 4: バンチ電極での波形(実線)と理想関数(破線)

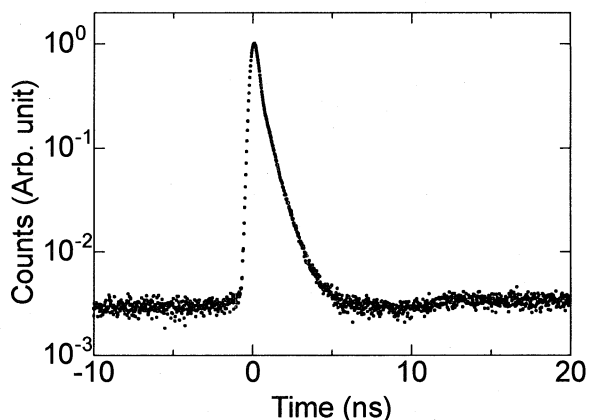


図 5: シリコンウェハの陽電子寿命スペクトル。陽電子の入射エネルギーは~1 keV。時間分解能は 300 ps 程度である。

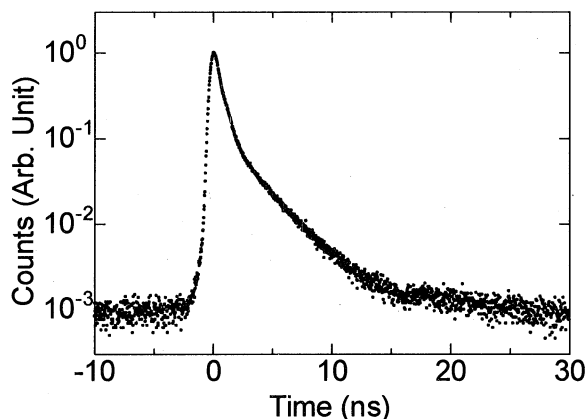


図 6: ポリエチレンの陽電子寿命スペクトル。陽電子の入射エネルギーは~8 keV。

実際の短パルス化においては、陽電子寿命スペクトルを確認しながらチョッパー波形のタイミング、パルス幅やバンチ電極のオフセット電圧などを調整し、実験的に最適な条件を求めた。その結果、見積もりよりも 100 V 程度小さいオフセット電圧(~250 V)で時間分解能が最小となった。以上の条件により得られた陽電子寿命スペクトルを図 5 に示す。このとき、試料としてシリコンウェハを用い、陽電子の平均入射エネルギーはおよそ 1 keV であった。時間分解能は陽電子の入射エネルギーやチョッパー波形の微調整により変化するが、時間分解能としておよそ 300 ps 程度を得ることができた。これは、放射性同位元素を用いた従来の陽電子寿命測定装置と比べて同程度かあるいは若干大きい。高分子材料中でのナノ空孔評価のために測定されるオルソポジトロニウム(o-Ps)のピックオフ消滅の寿命(通常 1 ns 以上)に比べて十分小さい。このときの S/N (ピーク/バックグラウンド比)については 340 程度であり、目標の 3 桁以上に比べると依然として小さくなっている。この原因としては、チョッパー付近に 4 枚のタングステンメッシュが使用されているため、ここでの消滅線が検出されるためと考えられる。今後より透過率の高いメッシュに変更することにより S/N の更なる向上が期待できるが、そのためには粗いメッシュを使用することによる電場の漏れなどを再考慮する必要があると考えられる。別の改善点として、検出器を試料部に出来る限り近付けることにより計数効率を上げ、相対的にバックグラウンドを

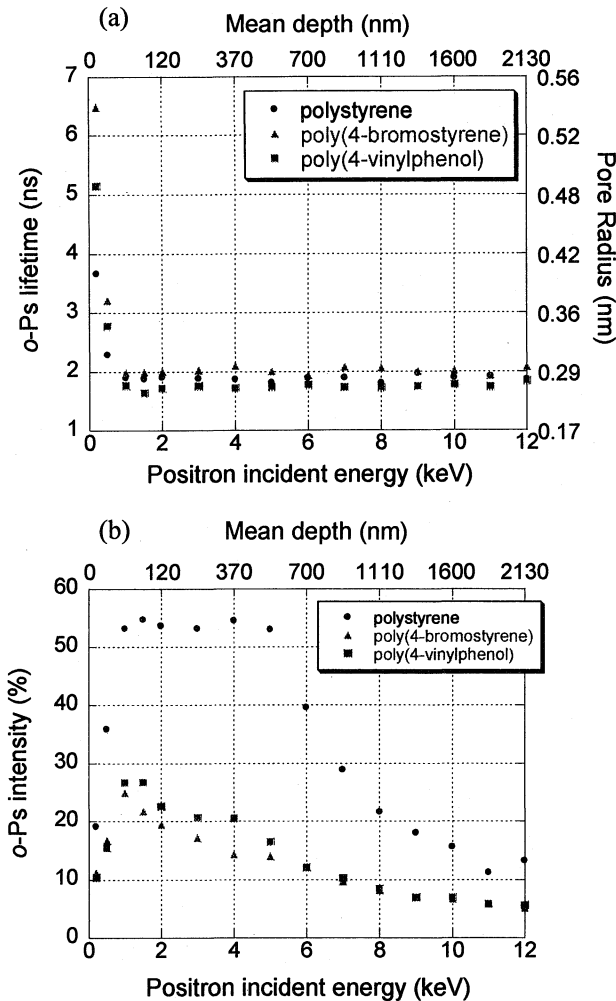


図7: ポリスチレンとその誘導体薄膜の *o*-Ps 寿命 (空孔サイズ) (a)とその生成割合(b)の陽電子入射エネルギー (打ち込み深さ) 依存性。膜厚は $\sim 1\mu\text{m}$ 、基板はシリコンウェハである。

小さくすることが考えられ、試料部、検出器周辺の構造を変更した。また、ビーム強度を大きくすることも計数率の面から重要であり、その時点で運用上最大ビーム強度で測定を行った。その時に得られた陽電子寿命スペクトルを図6に示す。カウントレートは $\sim 1400$  cps (従来の一般的な寿命測定では $\sim 100$  cps程度)、S/Nは1000以上を達成し、当面の目標をクリアすることができた。図6の試料はポリエチレンであり、Siと比べて長寿命成分がみられるのは、ポリエチレン中で *o*-Ps の陽電子と材料中の電子とのピックオフ消滅のためである。この寿命値を解析することにより材料中の空孔サイズ評価が可能となる。以上のように、現時点での時間分解能と S/N から、この装置を用いて高分子薄膜のナノ空孔評価が可能なる装置を構築することができた。

測定例として図7にポリスチレン誘導体薄膜の *o*-Ps 寿命(a)とその生成割合(b)の陽電子入射エネルギー依存性を示す[8]。図7(a)からわかるように、陽電子入射エネルギーは陽電子の平均打ち込み深さに、*o*-Ps 寿命は空孔半径と関係付けられる。空孔サイズは表面付近では大きな値を示し、バルクではほぼ一定となっていることがわかる。このように、本装置は薄膜材料の深さ方向のナノ空孔評価が可能である。図7(b)は *o*-Ps の生成割合を示したものであり、空孔量のある程度反映するものであるが、ここでは polystyrene に比べて poly(4-bromostyrene) や poly(4-vinylphenol) で Ps 生成量が極端に小さくなっている。これは分子構造内の電子吸引基あるいは極性基の存在による Ps 形成の抑制のためと考えられる。これらについてはナノ空孔評価への実用上、より詳細な研究が必要である。

#### 4 まとめ

阪大産研 S バンド電子線型加速器から得られる高強度の低速陽電子ビームを短パルス化し、陽電子寿命測定システムを開発した。現状において時間分解能はおよそ 300 ps、S/Nは1000程度、カウントレートは1400程度である。これにより、高分子薄膜材料中のナノ空孔を試料の深さ方向に対して評価することが可能となった。今後、高分子薄膜材料のナノ空孔評価や、物質と陽電子の相互作用の研究などに応用していく予定である。

#### 参考文献

- [1] Y. Honda, *et al.*, Material Science Forum, 255-257 (1997) 677-679.
- [2] M. Tashiro, *et al.*, Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan, Himeji, July 12-14, 2000, pp. 407-409.
- [3] M. Tashiro, Y. Honda, T. Yamaguchi, P. K. Pujari, N. Kimura, T. Kozawa, G. Isoyama, S. Tagawa, Radiation Physics and Chemistry, 60 (2001) 529-533.
- [4] M. Tashiro, Y. Honda, T. Yamaguchi, P. K. Pujari, N. Kimura, T. Kozawa and S. Tagawa, Materials Science Forum, 363-365 (2001) 664-666.
- [5] M. Tashiro, *et al.*, Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, Tsukuba, Aug. 1-3, 2001, pp. 309-310.
- [6] M. Tashiro, *et al.*, Proceedings of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, Kyoto, Aug. 7-9, 2002, pp. 222-224.
- [7] M. Tashiro, Y. Honda, Y. Terashima, M. Watanabe, P.K. Pujari, S. Tagawa, Applied Surface Science, 194 (2002) 182-188.
- [8] Y. Honda, M. Watanabe, M. Tashiro, Y. Terashima, K. Miyamoto, N. Kimura, S. Tagawa, Radiation Physics and Chemistry, 68 (2003) 463-465.