

大気中マイクロビームの開発

Development of in-air microbeam system

安田啓介^{*1}、菅谷頼仁^{*2}、能町正治^{*2}、V. H. Hai^{*2}、山本洋子^{*3}

Keisuke YASUDA, Yorihiro SUGAYA, Masaharu NOUMACHI, VO Hong Hai and Hiroko YAMAMOTO

Abstract

Modification of the beam extraction apparatus have been carried out at the in-air microbeam system. Using a beam extraction window of which area is 6 times larger than before, the detection efficiency of X-rays, energy range of detected X-rays and beam size were improved.

要約

大気中マイクロビーム装置においてビーム取り出し部の改良を行った。窒化シリコン薄膜の面積が従来より 6 倍大きい取り出しウィンドウを使用することによって、X線の検出効率、X線エネルギー測定範囲及びビーム径が改善された。

1. 緒言

大気中マイクロビームは生体試料や文化財試料など真空中に入れることが困難な試料の微細領域二次元元素分析に有用である。また、この技術は細胞照射などのシングルイベント照射にも用いることができ、応用範囲は広い。大気中マイクロビーム装置はいくつかの施設で開発されている。イオンビーム分析を目的としたものでは、大部分の施設ではビームの大きさが 10 μ m 程度のビームを用いて、最大数 10mm の範囲の測定が行われている。JAEA 高崎の TIARA では真空閉止膜に試料を直接取り付けることによって 1 μ m の大きさのビームでイオンビーム分析が行われているが、この方法では試料の測定範囲がおよそ 1mm 程度である。

我々はこれまでに若狭湾エネルギー研究センターのマイクロビーム装置を改良して大気中マイクロビームを開発してきた^{1,2)}。この装置では大気中で 10~15 μ m の大きさのビームが使用可能であり、生体試料の分析や放射線検出器の性能評価に実際に用いられてきた²⁾。この装置ではビーム取り出し部の形状による制限から、ビーム大きさを 10 μ m 以下とすることは困難であった。また、PIXE (Particle Induced X-ray Emission) 分析の際に測定できる X 線のエネルギーがおよそ 4keV 以上であり、軽元素の分析が不可能であった。また、ビーム照射位置によって X 線の検出効率が変わるためにデータ解析が複雑になるという問題もあった。

上記の問題点を改善しより高精度な分析を可能とするために、装置の改良を行った。具体的には 5 μ m 以下の大きさのビームを用いて 20mm 範囲の分析を行うことを目標としてビーム取り出し部の改良を行った。本報告では、装置の概要、改良点、及びビームを用いた性能評価試験について報告する。

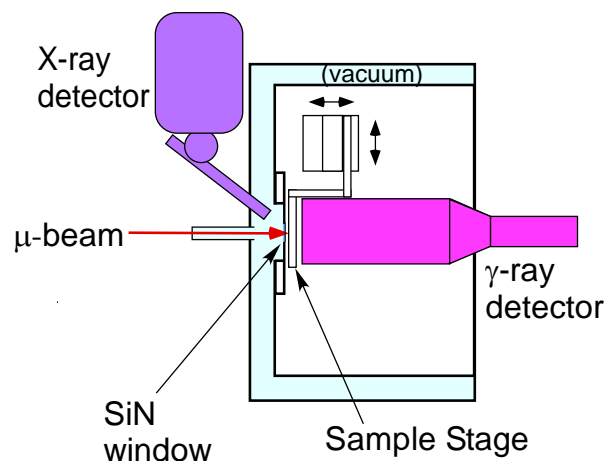


図 - 1 大気中マイクロビームのセットアップ

^{*1}研究開発部 エネルギー材料グループ、^{*2}大阪大学理学研究科、^{*3}大阪大学歯学研究科
本研究は、(財)若狭湾エネルギー研究センターと大阪大学の共同研究として実施した研究の一部である。

II. 実験のセットアップ

使用するビームラインは照射室 1 の元素分析・結晶構造解析コースである。図 - 1 に大気中マイクロビームのセットアップを示す。マイクロビームは厚さ 100 ~ 200nm の窒化シリコン薄膜を通して大気中に取り出され、試料ステージに取り付けられた試料に照射される。試料はビームに垂直な方向(x,y)にはモーターで、ビーム軸方向(z)には手動で動かすことができる。x,y 方向の移動範囲は 20mm で、この範囲の分析が可能である。モーターは加速器制御室の PC で制御される。ビームと試料中の原子又は原子核との散乱の際に発生する X 線、ガンマ線を検出器で検出することによって二次元元素分析を行う。

1. これまでのセットアップ

従来の試料周りのセットアップを図 - 2 に示す。ビーム取り出し窓に用いる窒化シリコン薄膜の厚さは 100nm で大きさは 1mm × 1mm である。厚さ、大きさは他研究施設で使用実績があったためこの値とした。この窒化シリコン薄膜は中心に 1mm × 1mm の穴があいたシリコン枠に付けられている。シリコン枠の大きさは 2.65mm × 2.65mm で厚さは 200 μ m である。窒化シリコン薄膜はシリコン枠に付けられた状態で Silson 社³⁾より販売されており、これを購入して使用した。このシリコン枠を中心に 1 mm × 1mm の穴があいたポリイミド膜(厚さ 125 μ m)に接着し、さらにこのポリイミド膜を 20mm × 3mm の穴があいたフランジに接着して使用した。ビーム取り出し部の写真を図 - 3 に示す。

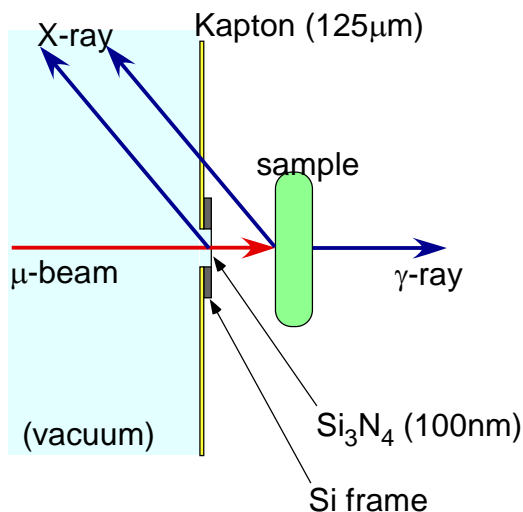


図 - 2 従来の試料周りのセットアップ

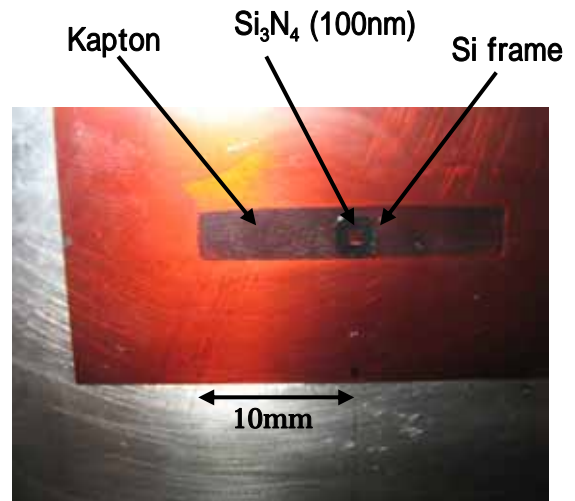


図 - 3 従来のビーム取り出し部の写真

X 線検出器は真空中に設置されており、試料で発生した X 線はポリイミド膜を通して検出される。ポリイミド膜での X 線の吸収のため、測定可能なエネルギーはおよそ 4keV 以上である。また、X 線がシリコン枠で遮られるのを避けるために、窒化シリコン薄膜と試料の距離を 1.7mm とした。陽子 2.5MeV のマイクロビームを用いた時、試料でのビームの大きさは 10 μ m 程度であった。測定の際のビーム量は窒化シリコン薄膜で発生する Si の特性 X 線を測定することによって求められた。ここで得られたビームは、歯質中のフッ素分析やプラスチックシンチレーターの性能評価実験に用いられた。

2. 新しいセットアップ

従来のセットアップでは以下の問題点があった。

- ビーム径が 10 μ m と、マイクロビームには大きい。これは、窒化シリコンあるいは空気との散乱によってビ

ームが広がってしまうためである。

- 測定可能な X 線のエネルギーが 4keV 以上のため、軽元素(Na~K)の分析が困難。
- 窒化シリコン薄膜で発生する Si の特性 X 線の測定の際、ビームの位置によっては X 線がシリコン枠で遮られてしまい測定効率が落ちてしまう。

上記の問題点を改善するために、ビーム取り出し部の改良を行った。試料周りのセットアップの図面を図 - 4、ビーム取り出し部の写真を図 - 5 に示す。10mm × 10mm のシリコン枠に付けられた大きさ 3mm × 2mm の窒化シリコン薄膜をビーム取り出し窓として用いた。窒化シリコン薄膜の面積の増大したため、薄膜が圧力に耐えられるか懸念があったので、厚さが従来の 2 倍の 200nm のものを用いた。これまでのテストでは、真空引き時、及びビーム照射時とも真空漏れは一度も発生していない。シリコン枠は 5mm × 5mm の穴があいたフランジに直接接着した。試料で発生した X 線は窒化シリコン薄膜を通して X 線検出器で検出される。このセットアップでは 1.5keV 以上の X 線が測定可能である。また、試料と窒化シリコン薄膜の距離は原理的には 0 まで近づけても X 線を測定することができ、ビームの大きさを小さくできると期待される。ビーム量は従来と同様に窒化シリコン薄膜で発生する Si の特性 X 線を測定することによって求める。薄膜の面積が大きくなったために、この X 線がシリコン枠で遮られる心配はほとんどない。

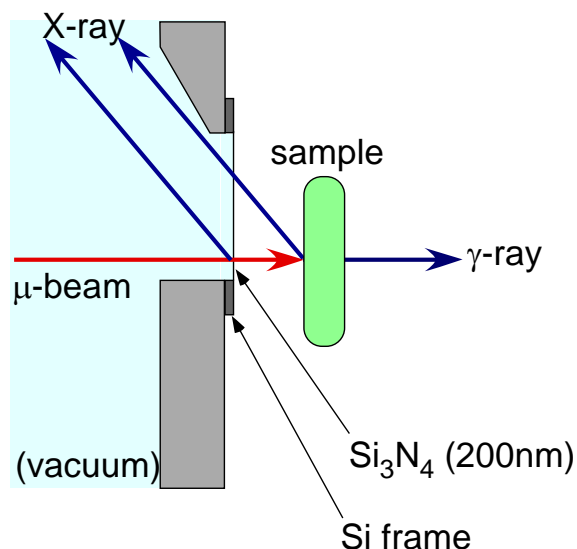


図 - 4 新しいセットアップ

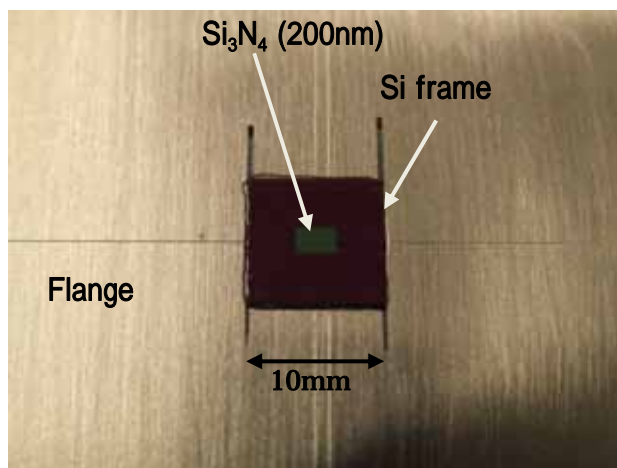


図 - 5 新しいビーム取り出し部の写真

III. ビームテスト

実験では銅メッシュ試料を測定し、X 線像からビームの大きさを求めた。また、窒化シリコン薄膜中から放出される X 線像も測定し、検出効率のビーム位置依存性を調べた。ビームにはタンデム加速器で加速された 2.5MeV の陽子ビームを用いた。ビーム取り出し膜と試料の距離は 0.7mm とした。ビーム取り出し部上流側の真空は 10^{-5} Pa だった。得られた二次元、及び一次元の X 線像を図 - 6 に示す。メッシュの線間隔は $62\mu\text{m}$ 、線幅は $8\mu\text{m}$ である。一次元の 1 つのプロファイルをガウス関数でフィットして分布の標準偏差 (σ) を求め、これを $(8\ln 2)^{1/2} (=2.35)$ 倍することによって半値全幅 (FWHM) とした。これからメッシュの線幅の影響を差し引くため、以下の式でビームの大きさ (FWHM) を求めた。

$$\text{ビームの大きさ} = \sqrt{FWHM^2 - 8^2} \quad (\text{式1}).$$

これからビームの大きさは $3.2(x)\mu\text{m} \times 3.7(y)\mu\text{m}$ と求められた。ビーム取り出し部改良前はビームの大きさはおよ

そ10 μm であったので、ファクター3ほど改善したことになる。これはビーム取り出し膜と試料の距離が1.7mmから0.7mmに短くなったためと考えられる。

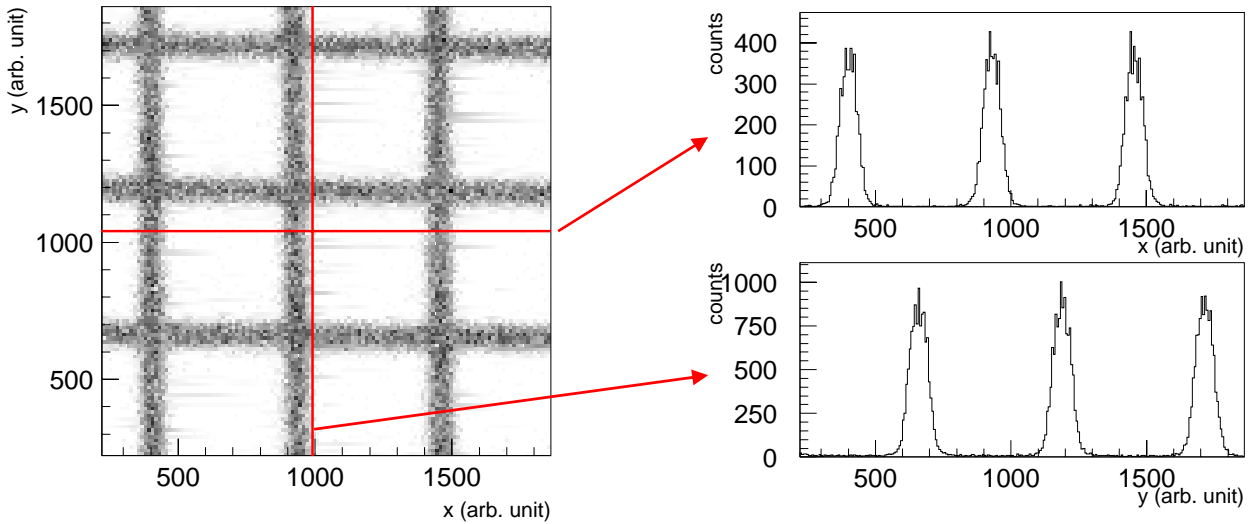


図 - 6 (左) X 線の測定で得られた銅メッシュの二次元像。図中の赤線は一次元像を測定した位置を示す。メッシュの線間隔は $62\mu\text{m}$ 、線幅は $8\mu\text{m}$ である。(右) 銅メッシュの一次元像。この測定からビームの大きさが $3.2(x)\mu\text{m} \times 3.7(y)\mu\text{m}$ と求められた。

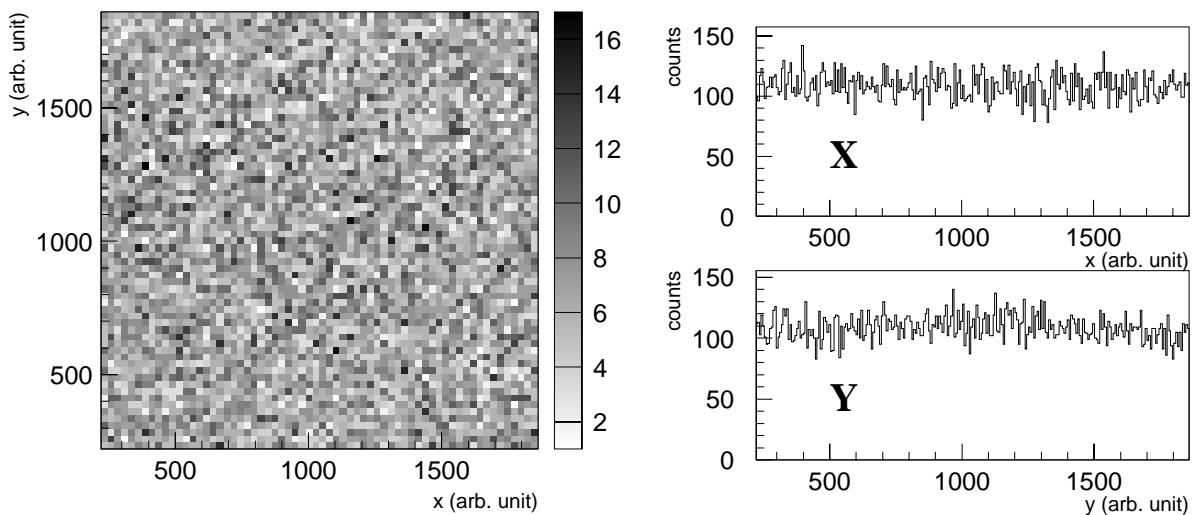


図 - 7 X 線の測定で得られた窒化シリコン薄膜の二次元像(左)とその射影をとったもの(右)。ビーム走査範囲はおよそ 1mm だった。

次に窒化シリコン薄膜で発生するシリコンの X 線像を図 - 7 に示す。左が二次元像で、右の 2 つが x 及び y 方向への射影である。ビームの走査範囲はおよそ $1\text{mm} \times 1\text{mm}$ である。二次元像から測定範囲では大きな濃淡の変化はなく、この範囲で Si の X 線の検出効率に大きな変化がないことを示している。従来のセットアップでは x

方向については測定可能な範囲が 0.5mm 程度であったので、検出効率のビーム位置依存性は大幅に改善されている。より詳細に調べるために二次元像の射影を見ると、x についてはほぼ平坦であるが、y についてはカウント数で 10%程度の変動を伴う構造が見られる。構造が現れる原因として、X 線の検出効率のビーム位置依存性、窒化シリコン薄膜の厚さの不均一性、測定中のビーム量の変動などが考えられる。測定を繰り返した時に構造の形が変化することから、測定中のビーム量の変動が原因である可能性が高いと考えている。y 方向のみに構造が見られる理由であるが、ビーム走査周期が y 方向は 10 秒であるのに対して x 方向は 0.04 秒である。ビーム走査周期が長いほどビーム量変動の影響が大きいので、y 方向にのみその影響が見られたのではないかと考えられる。これについてはビーム走査周期を変えるなどして、より詳細な調査が必要である。また、シリコン薄膜の厚さの均一性についてもまだ調べておらず、マイクロビームを用いた RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy) 法などによる測定が必要である。

図 - 8 に新旧のセットアップでフルルアパタイト ($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$) 試料を測定した際の X 線のエネルギースペクトルを示す。試料ホルダーにアラミド膜を貼り、その上に試料を固定して測定した。アラミド膜は我々が JAEA 高崎の TIARA での同種の実験の際に使用しており、手に適当なものがあつたため本実験でもこれを使用した。リン、カルシウムは試料に、シリコンは窒化シリコン薄膜に、塩素はアラミド膜にそれぞれ含まれる。従来のセットアップでは試料に含まれるリン、アラミド膜に含まれる塩素を検出できなかったが、新しいセットアップではこれらの元素も測定できていることが分かる。シリコンの特性 X 線は窒化シリコン薄膜で発生するもので、これは真空中を通過して検出器に入射するため、従来のセットアップでも検出される。

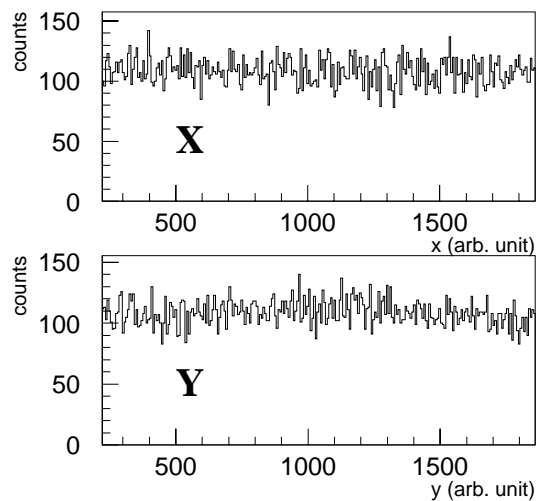


図 - 8 新しい(上)及び従来の(下)セットアップで測定したフルルアパタイト($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$)の PIXE スペクトル

IV. まとめ

若狭湾エネルギー研究センターの元素分析・結晶構造解析コースにおいて、大気取り出しマイクロビームの性能向上のためにビーム取り出し部の改良を行った。従来と比べて面積が6倍大きい窒化シリコン薄膜をビーム取り出し窓として用いることによって、窓と試料の距離を短くすることが可能になりビームの大きさをおよそ 1/3 にすることに成功した。また、この改良によって X 線測定の際のエネルギーの下限を従来の 4keV から 1.5keV まで下げることができ、リン、塩素などの軽元素の分析が可能になった。更に、ビーム量測定に用いる、窒化シリコン薄膜で発生するシリコン X 線の測定効率も大幅に改善され、ビーム量がより高精度で測定できるようになった。この改良によって、より位置分解能が高い大気中マイクロビーム分析やシングルイベント照射が可能となり、分析の際の感度や精度の向上も期待される。

参考文献

- 1) K. Yasuda, M. Hatashita et al., Nucl. Instr. and Meth. B 210 (2003) 27.
- 2) K. Yasuda, V. H. Hai et al., Nucl. Instr. and Meth. B 260 (2007) 207.
- 3) <http://www.silson.com/>