

## 大阪府立大学における 1 MeV イオン加速器を用いた表面分析の開発

### DEVELOPMENT OF SURFACE ANALYSIS WITH 1-MEV ION ACCELERATOR AT OSAKA PREFECTURE UNIVERSITY

宮丸広幸<sup>#</sup>, 藤田萌花, 谷口良一, 奥田修一

Hiroyuki Miyamaru<sup>#</sup>, Honoka Fujita, Ryoichi Taniguchi and Shuichi Okuda  
Graduate school of engineering, Osaka Prefecture University

#### Abstract

This paper describes recent development of surface analysis with the 1-MeV ion accelerator at Osaka Prefecture University. The disktron-type accelerator was transferred to our university from TRI-Osaka in 2012 and its maintenance has been performed for two years to operate the accelerator again. A surface analysis system including this accelerator was developed for RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) and PIXE (Particle Induced X-ray Emission). A silicon detector and a silicon lithium X-ray detector were newly equipped to an analysis vacuum chamber. RBS measurement for the magnetic material inside a floppy disk clarified the depth profile of a thin iron layer. A nuclear reaction analysis was employed to detect a small amount of lithium in an aluminum metal plate. The alpha particles from the  ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$  reaction were measured at high energy region of the RBS spectrum. Several X-ray peaks were identified by the PIXE analysis for a mineral supplement. A CdTe detector was newly employed and used simultaneously to measure X rays at higher energies. The X rays over 20keV were detected with the CdTe detector with high efficiency. Further development of the system is in progress to establish the method of quantitative analysis.

#### 1. はじめに

大阪府立大学地域連携研究機構放射線研究センターでは2012年に1MeVイオンビーム加速器を大阪府立産業技術総合研究所より譲り受け、RBSやPIXEなどの加速器分析に用いるべく整備と改修を進めてきた。この加速器は神戸製鋼所製のmikro-iという加速器分析装置として販売されていたもので、導入からすでに長い年数が経過している模様であった。このため移設後の加速器の再起動は容易ではなく、2年間に渡る復旧と改修作業により最近になり安定したヘリウムや水素イオンビームを取り出すことが可能となった。本学では大型の電子線ライナックを所有しているが、イオン加速器についてはこのような加速エネルギーの比較的高いものはない。このためイオン加速器を用いた各種表面分析が可能になれば、従来のライナックと併用して大学院生等への加速器に関する教育効果を高められると期待している。また今後の研究への活用も念頭に放射線検出器周辺を新たに整備して特色のある分析システムの開発を進めている。本論文ではこの現状を報告する。

#### 2. 加速器分析システムの概要

本加速器はシングルエンドの加速電圧1MV未満という仕様である。加速方式はディスクトロンという円盤ディスクが回転し電荷を運搬する形式でバンデグラフの一種である。ディスク回転機構やイオン源などは直径1m高さ1.8m程の小型の金属製円筒タ

ンク内に収められておりSF6ガスの充填により絶縁されている。加速部が小型であるため、大学の手狭な実験室にも設置できることは利点であるが、ガスの交換には絶縁タンクの開放が必要となるなどメンテナンス性は劣る。イオンビーム種としては水素またはヘリウムが選択できる。ビームラインには数十ミクロン程度まで制御可能なXY方向の物理スリットがビームライン上流に配置され、そのスリットにより絞られたビームがウィーンフィルターを通過することで分子イオン等のイオン種の弁別がなされる。その後、2つの円形アパーチャーを通してビームが整形され、最後に四重極磁気レンズによって試料ステージ上でフォーカスされる。ビーム径については仕様では1 $\mu\text{m}$ が可能であるが、現在は調整中であり直径が1mmの円形ビームスポットとして分析に用いている。ビーム電流はイオン源からの引き出し直後では約1 $\mu\text{A}$ で、試料位置では調整により1nAが得られる。試料ステージにはXY方向の移動ステージに加え、2軸の回転が可能なゴニオメータが装備されている。試料の装着部はステージと電気的に絶縁されており二次電子放出抑制のための125Vの正バイアス電圧が印加された状態にてビーム電流測定を行っている。電流値はデジタルカレントインテグレーター(ORTEC 439)にてデジタル化された後カウンタにて計測され、照射クーロン量の規格化などに用いられる。

分析に関しては新たに検出有効エリア25mm<sup>2</sup>のイオン注入型シリコン検出器(ORTEC ULTRA)を角度140度に導入しRBS測定が可能になった。これに加え、X線用のシリコン半導体検出器によりPIXE分析が可能である。現在はこれら2種類の検出器によ

<sup>#</sup>miyamaru@riast.osakafu-u.ac.jp

る表面分析の整備を行っているが、分光器を用いたイオンビーム誘起光計測や、より高いガンマ線の計測のための放射線検出器の導入も検討しており、多角的な分析が可能となるよう整備を進めている。

### 3. RBS 分析

本加速器で試験的に得られた RBS 分析の例を示す。図 1 ではフロッピーディスクの記録部材料の RBS スペクトルである。RBS 測定では元素の同定はスペクトルのエッジ部のエネルギーから判別できるものの、水素イオンの場合には元素ごとのエネルギーの変化量が小さく弁別が難しい。このため通常はヘリウムイオンに置き換えて RBS が測定される。しかしながら PIXE 分析を同時に行うことで組成元素が特定されることを利用して RBS スペクトルを解析することは有効である。本分析でも PIXE 分析により鉄の信号が得られており、この RBS スペクトルはおよそ  $0.6\ \mu\text{m}$  程度の酸化鉄磁性体薄膜が高分子のバックグランド材料に形成されている様子を表している。このように  $1\text{MeV}$  程度の加速エネルギーではその飛程の問題から、深さ方向の分析には限度があるが、薄膜などの分析には十分対応できることが分かる。

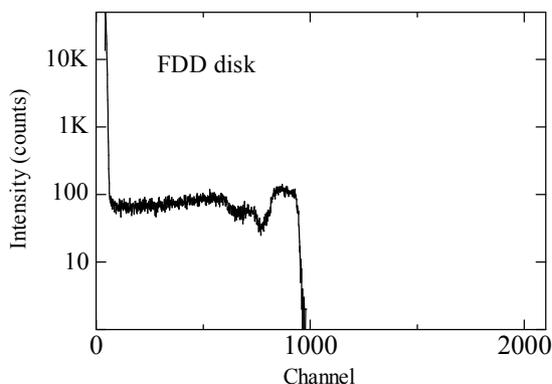


Figure 1: RBS spectrum of a floppy disk.

### 4. 核反応分析

通常は軽元素を RBS にて分析するのは困難である。軽元素は散乱断面積が小さいだけでなく、母材と奥まで到達したビームの散乱により連続ピークが作られ、それらに軽元素の散乱ピークは埋もれてしまうからである。後述する PIXE 分析においてもナトリウムより軽い元素の分析は X 線の測定の困難さから向いていない。このようにリチウムやホウ素などの軽元素の分析はこれら RBS や PIXE では困難であるが、イオンビームを用いると他に核反応分析法 (NRA, Nuclear Reaction Analysis) が適用できる。ここでは試験的な試みとしてリチウムに関する核反応を用いた分析を紹介する。

リチウムを 5% 含有したアルミニウム金属を試験的に分析し、その結果を図 2 に示す。RBS スペクトルに加え、高いエネルギー領域にわずかながらカウントがある。これは  ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$  による  $9\text{MeV}$  付近の

エネルギーを持つ  $\alpha$  線の信号である。この核反応は陽子のエネルギーが  $950\text{keV}$  において  $10\text{mb}$  程度の反応断面積を持つ。これらの核反応法の感度は主に反応断面積の大きさに依存するため、高感度での分析は実用上厳しいと予測できる。しかしながらこのようにリチウムからの  $\alpha$  線はエネルギーが高いことから数%の含有量であると、計測において特に特別な工夫もなく測定が可能である。 $\alpha$  線エネルギーが高いため散乱イオンとの弁別も容易なため、検出立体角の向上と合わせて散乱イオンの入射抑制により感度はより高められる。このように低エネルギー核反応を用いた分析は本加速器システムの特徴とすべく、今後ビーム電流の増加や検出効率の向上などの工夫を加えつつ整備を進める予定である。

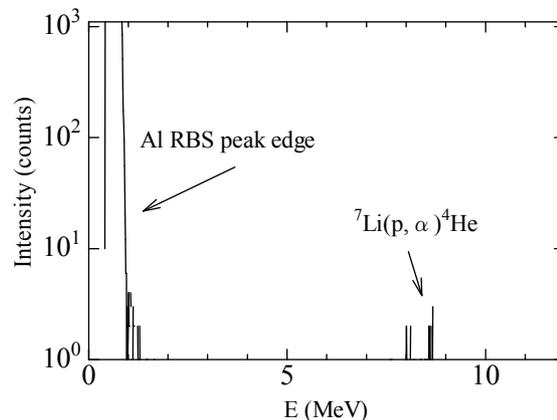


Figure 2: Alpha particles from p-Li reaction in the RBS spectrum.

### 5. PIXE 分析

$950\text{keV}$  の水素イオンビームによる PIXE 分析の例をいくつか紹介する。ビーム電流は  $1\text{nA}$  である。図 3 には銅のエネルギースペクトルである。銅の  $K_{\alpha}$ ,  $K_{\beta}$  線に対応する  $8.05\text{keV}$ ,  $8.90\text{keV}$  のピークに加え、より低エネルギー部では L 線 ( $0.93\text{keV}$ ,  $0.95\text{keV}$ ) によるピークも明らかに測定できる。銅の  $K_{\alpha}$  線に対する半値幅 (FWHM) は  $180\text{eV}$  である。また測定 X 線エネルギーの下限値も  $800\text{eV}$  程度であることから、通常の PIXE 分析と同様、検出対象はナトリウム ( $1.04\text{keV}$ ) 以降の元素となる。

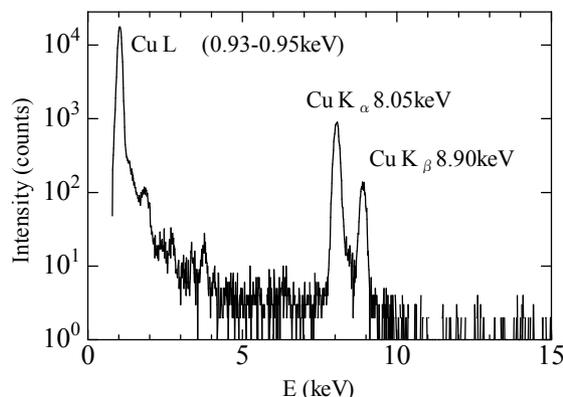


Figure 3: PIXE spectrum of copper.

つぎにミネラル入りのサプリメントの錠剤を分析対象とした結果を図 4 に示す。このようなミネラル補給用の錠剤はナトリウム、マグネシウムなど人体の必須元素が多数含まれており、低エネルギー側の分析特性を見るのに適している。スペクトルからは大きなピークとしてマグネシウム(1.25keV)、リン(2.02keV)、カルシウム(3.69keV)が判別できる。また高いエネルギー領域には鉄(6.4keV)や亜鉛(8.64keV)のピークが観測されている。また 2.3keV 付近にある比較的大きいピークはモリブデンの L 線による信号である。現在はまだ定量化できるまでに分析システムが整備されていないが、このように PIXE 分析は非破壊で様々な元素を一度に分析できる点において優れている。PIXE 分析で用いるビームのエネルギーは 3MeV 付近を用いることが分析感度の観点から一般的であるが、本加速器で用いるビームのエネルギーはそれよりかなり低い。このため分析感度においては劣るのだが、X 線低エネルギー部における制動放射の影響が小さくなるという利点もある。これは図中のエネルギースペクトルに低エネルギー部になだらかな連続部がないことから明らかである。これは低エネルギー X 線のピーク分離には有利となる。

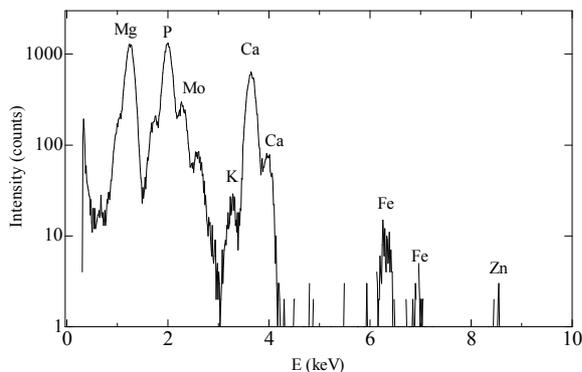


Figure 4: PIXE spectrum of the mineral supplement.

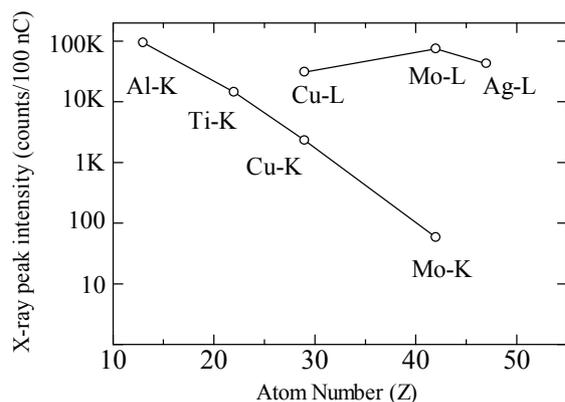


Figure 5: X-ray peak intensities for various metals.

図 5 には様々な金属試料に対する一定の照射クーロン数あたりの X 線ピークの収量の比較を示している。これらの元素の X 線エネルギー範囲は 1keV~9keV にわたるが、この範囲での検出効率の違いや材料による X 線吸収特性の差によるピーク強度の補正はされていない。図のように K 線の収量は原子番号が増加するにつれ急激に減少し、L 線は 1keV 以上を超えないと測定にかからない事情から L 線の測定にて分析できる元素は銅以降に限られる。銅以降の元素では L 線の発生量が大きくこれを分析対象とできる。このため本分析システムではおよそタンと銅の間にあるマンガンから亜鉛などの元素の感度が低くなる。この特徴は通常の PIXE 分析でも起こることであるが、イオンビームのエネルギーが低いことにより顕著に表れる。

## 6 複数検出器による PIXE 分析の改良

複数の元素が同時に測定できる点が PIXE の特徴であるが、モリブデンなどの中重元素が含まれる場合にはこれらの L 線は発生強度が強く、他に含まれる軽元素からの K 線ピークとエネルギースペクトル上で重複する。生体試料などではリンや硫黄など軽元素の測定が重要であるが、中重元素の存在はピークの分離を困難にする。たとえば 1-3keV の領域にはナトリウムから塩素までの軽元素の K 線ピークと亜鉛からカドミウムまでの L 線ピークが狭いエネルギー領域に混在することになる。X 線検出器のエネルギー分解能だけに頼りにこれらを分けることは通常困難である。中重元素については収量が小さいがそれらからの K 線を同時に測定することで分離が可能であるが、通常の Si 検出器では高エネルギー部での検出効率が低いのが問題である。これを克服するために Si 検出器は低エネルギー測定に特化し、効率の高いテルル化カドミウム(CdTe)検出器を新たに配置して 20keV を超えるエネルギー領域の X 線の計測を行った。用いた CdTe 検出器はベリリウム薄板を前面に備えたアルミハウジング中に有感体積が 2mm 角程の結晶を有する。これを試料から 1cm 程度の距離に配置し測定した。

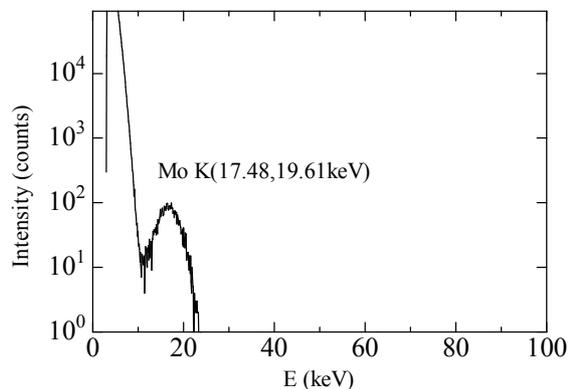


Figure 6: Energy spectrum of Mo measured with CdTe detector.

図 6 は CdTe 検出器で測定したモリブデン試料からの K 線のスペクトルである。10keV 付近までは検出器のノイズレベルが高いがモリブデンの K 線が測定できることが確認できた。モリブデンの L 線はリンや硫黄の K 線付近とエネルギー領域が重複する。このためモリブデンが存在するとピークが複雑になるのだが、モリブデンの K 線を同時測定することでその存在量を推定することが可能になる。

## 7 まとめ

本加速器を用いた表面分析のシステムの整備は上記のように現状まだ入り口段階である。加速エネルギーに上限値があるため、適用できる分析手法も限られるが、計測にも工夫をこらしつつ特徴ある分析システムの構築を進める予定である。また教育的な観点からは加速器が小型であるため加速器の昇圧運転、ビーム軌道の制御などを大学院生が身近に体験できることになり加速器に関する理解がより深まり、学習効果の向上に役立っている。今後、この加速器の整備をより進めて教育と研究に活用したいと考えている。

## 謝辞

この研究の一部は、2012-2014 年度 KEK 大学等連携支援事業の支援により行われた。