

## MICROBEAM ANALYSIS SYSTEM AT TOHOKU UNIVERSITY

Shigeo Matsuyama<sup>1,A)</sup>, Keizo Ishii<sup>A)</sup>, Hiromichi Yamazaki<sup>B)</sup>, Youhei Kikuchi<sup>A)</sup>, Ryouhei Oyama<sup>B)</sup>,  
Yu Kawamura<sup>A)</sup>, Manabu Sakamaki<sup>A)</sup>, Tatsuyam Yamamoto<sup>A)</sup>, Genki Momose<sup>A)</sup>, Azusa Ishizaki<sup>A)</sup>,

<sup>A)</sup> Department of Quantum Science and Energy Engineering,

Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

<sup>B)</sup> Cyclotron Radioisotope Center,

Tohoku University, Sendai 980-8578, Japan

### Abstract

A microbeam system was constructed at the Tohoku University Dynamitron laboratory and optimization of the system has been performed. Minimum beam spot sizes of the microbeam had been limited to  $2 \times 2 \mu\text{m}^2$  by parasitic field contamination. This parasitic field contamination was ascribed to the tungsten carbide slits and the annular Si surface barrier detector in the case of RBS analysis. The slits were replaced and the standard RBS detector was also replaced by another annular detector with larger inner hole. Following these changes, the parasitic field contamination of the system was strongly reduced, which was confirmed by the grid shadow method, and the performance of the microbeam system was greatly improved. A measured beam spot size of  $0.4 \times 0.4 \mu\text{m}^2$  at a beam current of 20 pA is currently being obtained by beam scanning across a Ni mesh (2000 lines/inch) measuring X-rays. The results obtained by the grid-shadow method show that a beam spot size less than  $0.4 \mu\text{m}$  can be obtained in the low current range. While improving the microbeam system, the analysis system has been developed and is applicable to simultaneous in-air/vacuum PIXE, RBS, SEM and STIM analysis and 3D micronCT.

## 東北大学のマイクロビーム分析システム

### 1. はじめに

マイクロイオンビームは、PIXE、RBS等のイオンビーム分析法と組み合わせることにより、微小領域での非常に強力な分析手段となる。また、イオンビームが物質に付与するエネルギーによる微細加工にも非常に有効である。

東北大学では、マイクロビームにより発生させた疑似単色マイクロX線源を利用した3次元マイクロCTをはじめとする、複合的なイオンビーム分析手法を組み合わせマイクロビーム分析システムの構築を進めてきた。本論文ではこれらの詳細について述べる。

### 2. マイクロビームシステム

マイクロビームシステム（トーキンマシナリー社製）は、 $1 \mu\text{m}$ 以下のビーム径を得ることを目標とし、東北大学の4.5MVダイナミトロン実験室の15度ラインに設置された<sup>1)</sup>。ダイナミトロン加速器は最大電圧4.5MVのシングルエンド型で、高圧ターミナル内にデュオプラズマトロン型イオン源を備えており、水素、重水素、ヘリウムイオンの加速が可能である。本加速器のビームブライトネスは $3.3 \text{ pA} \cdot \text{mrad}^2 \text{mm}^{-2} \text{MeV}^{-1}$ で、最大電流は3mAである。サブミクロンのマイクロビームを形成するには、 $10^{-4}$ 以下のエネルギーの安定度が要求されるため、60度分析電磁石

( $\rho=75\text{cm}$ )によりエネルギー分析を行い $10^{-5}$ 台のエネルギー安定度を得ている。マイクロビーム形成システムは、物点となるオブジェクトスリット、レンズに入射するビームの発散角を制限する発散制限スリット、ビームハローを低減するバッフルスリット、ビーム集束を行う二連精密四重極レンズから構成される。図1に開発したマイクロビーム形成システムを示す。

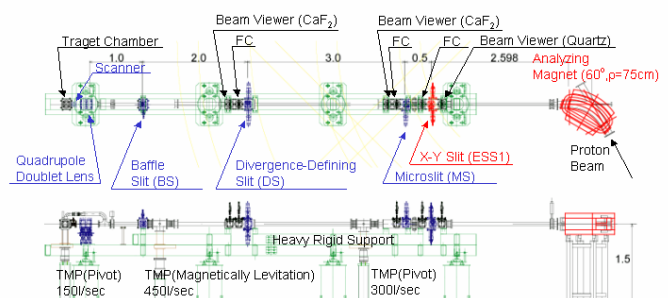


図1 マイクロビーム形成システム

四重極レンズは、多重極成分を最小限に抑えるために一体の軟鉄からNC加工により $2 \mu\text{m}$ 程度の加工精度で削りだし製作した<sup>2,3)</sup>。これらは振動によるビームの広がりを抑えるために免震台上に設置した。物点となるオブジェクトスリットから精密四重極レ

<sup>1</sup> E-mail: shigeo.matsuyama@qse.tohoku.ac.jp

レンズ入り口までの距離は6m、ワーキングディスタンスは最短で26cmである。この場合、ビームの縮小率は水平方向で1/35.4、垂直方向で1/9.2である。2連のレンズシステムのため、縮小率が異なることと、ビームスキャナーはQレンズに入射するビームの領域を出来るだけ小さくするため、ビームスキャナーはレンズの下流に配置した。これらのビームの制御は、PLCとWE7000を通じて行われる。制御ソフトは、操作履歴情報から実験のタスクを抽出し解析を行い、客観的情報に基づきLabVIEWを用いて構築した。さらに使い良さを高めるために、構築したソフトウェアを実験に用い、インタビューを組み合わせで改良を行った。その結果、構築した操作パネルを用いることにより、ウインドウフォーカスが大幅に減少し、使いやすいソフトウェアを構築できた。さらに、操作履歴の抽出により、実験者が意識することなく操作している機能についてもウインドウに取り込むことが可能となり、効率的なインターフェイスの構築ができた。

### 3. マイクロビーム分析システム

分析は、大気中においても、真空中においても可能で、PIXE, PIGE, RBS, off-axisSTIM, DirectSTIMらの分析手法を併用することが可能である<sup>4,5,6</sup>。図2に分析システムの模式図を示す。また、マイクロビームをターゲットに照射することにより、準単色マイクロX線源を生成し、試料の透過像をCCDカメラを用いて撮影する3次元ミクロンCTも可能である<sup>7</sup>。これらの実験は、ターゲットチャンバーを交換することなく、付属の部品を交換することにより切り替えることが可能であり、容易なセットアップを実現している。

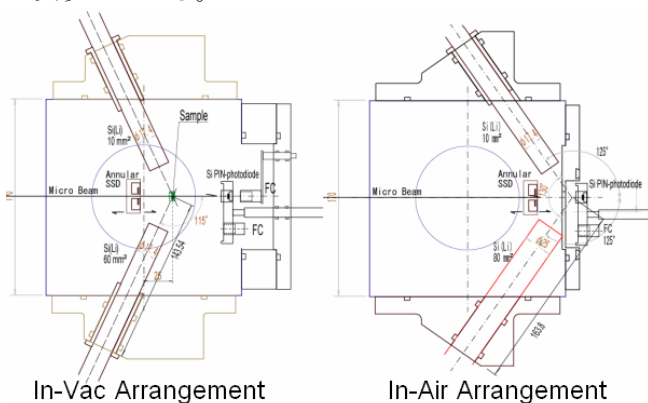


図2 マイクロビーム分析システム

真空中でのPIXE分析は、2台のSi(Li)検出器を用いて行う。高分解能の検出器と、大面積の検出器を組み合わせることにより、低エネルギーから高エネルギーまでのX線を効率よく測定することが可能である。また、一台の検出器をHPGe検出とすることにより、PIGE分析も可能である。C,N,Oの軽元素は、RBS法によって分析する。角度分解能を悪化させることなく、効率的な分析を可能とするため、アニュ

ラー型の検出器を用いた。RBS法で検出できない水素の分析は、off-Axis STIMにより行う。荷電粒子検出器をビーム軸から28度ずらして配置することにより、試料中の水素元素により散乱された陽子を、その他の元素からの散乱陽子と分離して測定することができる。水素以外の元素からの散乱線は、運動学的な広がりを持っているため、分解能は悪いものの、そのエネルギーは試料の厚みの情報を持っているため、照射中の試料の変形や変性を分析と同時に知ることができる。さらに詳細な厚みの測定は、ビームライン上に荷電粒子検出器を配置し、透過したイオンのエネルギーを測定するDirect STIMにより行うことができる。この場合、ビーム量を抑える必要があるためにPIXEやRBS等と同時測定は不可能であるため、照射前と照射後にSTIM測定を行うことが必要となる。分析と同時に試料の厚みを高精度に知るためには、透過イオンをカーボンフォイルやAlフォイル等に散乱させて検出するon-off Axis STIMも可能であるが、この場合、水素分析が出来ないため、通常は用いていない。STIM用の検出器としてはSi-PINフォトダイオードを用いている。本検出器は光用の検出器であり、面積は小さいものの優れたエネルギー分解能を持つ(5.486MeVのα線に対し15keV以下)。さらに低コストであるため、ダメージを受けやすいSTIM用の検出器としては最適である。SiPINフォトダイオードはファラデーカップと共に円形フランジに取り付け、回転によりDirect-STIM、off-axis STIMを切り替えている。

大気中での分析システムは、基本的に真空分析システムと同じであるが、STIMシステムが異なる。これまではDirectSTIMだけが可能であったが、アダプターを取り付けることによりoff-Axis STIM, on-off-Axis STIMが可能となった。ビームの大気取り出しは、5μmのポリカーボネートフィルムを通して行う。試料のバックングとビーム取り出し膜を同じにすることにより、マイラーフォイル中でのビームの散乱によるビームの広がりを最小に押さえている。このことは、試料の交換時にビーム取り出し膜の交換も行われることになり、ビーム取り出し膜の損傷による大気突入事故の可能性も低減している。大気取り出し膜/試料バックングは同時に3枚取り付けられる構造にしており、真空を破ることなく試料の交換が可能である。

ビーム調整や試料の形状のモニターはSEMにより行うことができる。前述のような多検出器を用いた分析システムとの両立のために、コンパクト(直径2cm×長さ4cm)なチャンネルエレクトロンマルチプライヤー(CEM)を用いた二次電子検出システムを構築した。

### 3. システムの性能

マイクロビームライン設置当初のビーム径は2×2

ミクロン程度で、ビーム電流が10pA程度であった。ビーム径の縮小の障害となっていた最大の原因は、寄生磁場であった。寄生磁場を与えていた最大の部分は、ビームの発散を制限しているスリットチップであった。BSを用いずにビーム形成後、BSを挿入したところ、ビームが変位するだけでなく、ビーム径が大幅に広がった。BS挿入前と挿入後のCu-1000メッシュからのX線分布画像を示す。磁化しているスリットを挿入することにより、ビーム径が大きくなっていることが確認できる。

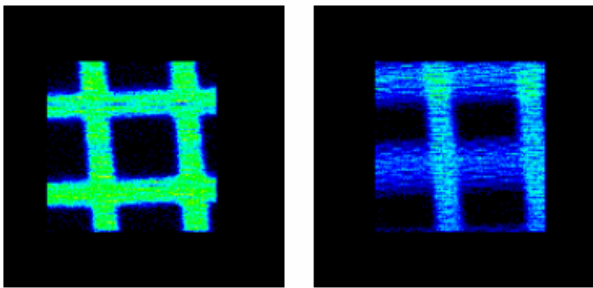


図3 BS挿入前後でのX線分布画像の変化  
(左図：挿入前、右図：挿入後)

スリットチップはWC製であるにもかかわらず、DS,BSで用いているスリットチップの内の約半数が磁化していることが分かった。PIXE分析の結果、CoがWの1/10程度含まれていた。CoはWCの焼結成形のためのバインダーとして用いられていると考えられる。WCは磁性体ではないものの、強磁性のCoが含まれているために容易に磁化するものと考えられる。着磁した原因については不明であるが、スリットチップホルダーの加工や取り付け時に磁場にさらされたためではないかと考えられる。これらのスリットチップは消磁後も最大で1 $\mu$ T程度の磁場を発生させており、ビームに影響を及ぼしているため、Coの成分がWの1/100程度のスリットチップに交換した。磁化については、スリットチップ以外にも、免震台の磁化が見られた。これは、免震台加工時に用いたマグネットチャックによる着磁と考えられる。また、バルブ類のコントロールで用いている電磁弁からの磁場の影響を最小にするために、電磁弁をAC100Vによる駆動からDC24Vによる駆動に切り替えた。

これらの改良を加えた後のGridShadowパターンを図4示す。グリッドシャドウ法はこれらの浮遊磁場の影響や、Qレンズの固有、寄生収差を見るのに非常に有効な手段で、結像面にグリッドを配置し、その下流でのパターンを見ることにより、これらの影響を見ることが出来る<sup>2)</sup>。本研究では、結像面にAuの2000メッシュを貼り付け、その53mm下流に設置したZnS(Ag)シンチレータによりシャドウパターンを測定した。シャドウパターンにより寄生収差を測定する場合、レンズへの入射角を出来るだけ大きくする必要があるので、本システムの許容するアクセプタ

ンスは、Qレンズを通るビームダクトにより決定される。Qレンズのボア径は直径10mmであるが、ダクトの内径は6mmなので、最大のアクセプタンスは $\pm 0.5\text{mrad}$ となる。スリットは4角なので、アクセプタンスは $\pm 0.33\text{mrad}$ とした。このアクセプタンスは、ビームの発散とほぼ同じ程度であった。また、高次の寄生成分を見る場合、グリッドのパターンとビームの収束軸の角度が小さい方が良いが、小さすぎると高次の成分が目立ちすぎて低次の成分が逆に判別しにくくなる<sup>8)</sup>。そこでシャドーパターンを見ながらレンズを回転させ、数本のパターンが見れる角度とした。回転角は1.75度である。グリッドシャドーパターンを見ると、両レンズにおいて、Y収束についてわずかなSextupoleの寄生磁場が見られるが、X収束については寄生磁場が見られない。図5にPRAMとOXTRACEコードにより得られたシャドーパターンを示す。寄生磁場は、Qレンズと同じ位置で発生するとして計算しており、%は四重極磁場に対する比率である。計算では0.05%のsextupole磁場は容易に判別が可能で、skew Sextupole磁場についてはsextupole成分よりも判別しにくいものの、0.1%程度の成分は判別可能であることが分かる。実験値と計算値との比較から、レンズの励磁方向によらず、X軸に対するsextupole成分（Y方向に対するskew sextupole成分）が0.1%程度存在していると考えられる。これの原因については、寄生磁場の可能性とレンズ自体の寄生収差の可能性がある。これについては、Qレンズを90度回転させれば調べることが可能であるが、構造上の問題でレンズを90度回転させることが不可能であり、原因は分かっていない。可能性として、レンズの電流導入部の電流のキャンセルが十分でない可能性があり、今後改良の余地がある。しかしながら、0.1%程度のsextupole磁場は、サブミクロンビームの形成上問題はないと考えられる。

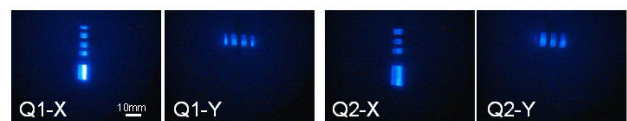


図4 測定したグリッドシャドウパターン

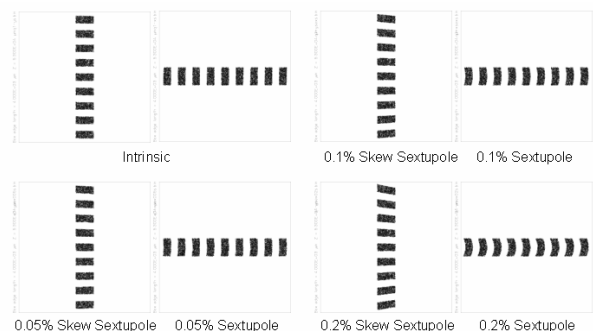


図5 グリッドシャドウパターンの計算値

寄生磁場を除去後、オブジェクトサイズとビームサイズの関係調べた。図6にオブジェクトサイズとビームサイズの関係を示す。X軸に対する



Sextupoleの寄生磁場の場合、上下方向での磁場の非対称性が考えられる。そのため、Qレンズは、最初のQレンズをY収束、後段のQをX収束とした。これにより、Qレンズの上下の非対称性の影響を最小に抑えることが可能となる。実際の分析を想定して、NiまたはAuの2000メッシュ上をX-Yスキャンし、位置毎のX線収量をダブルガウッシャでデコンボリューションした。オブジェクトのサイズを小さくするに従い、ビーム径も小さくなっていくことがわかる。オブジェクトサイズが30×10ミクロンの時に、0.4×0.4ミクロンを達成している。このときのビーム量は数10pAであった。スリット径が50×15ミクロンの時にはビーム径は1ミクロンであり、このときには100~200pAであった。これらのビーム径は、メッシュの断面が垂直になっているとして導出した値であり、実際の2000メッシュでは断面が垂直ではないので、実際にはさらに小さなビーム径を得ていると考えられる。

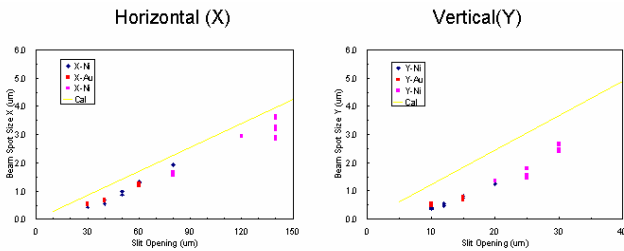
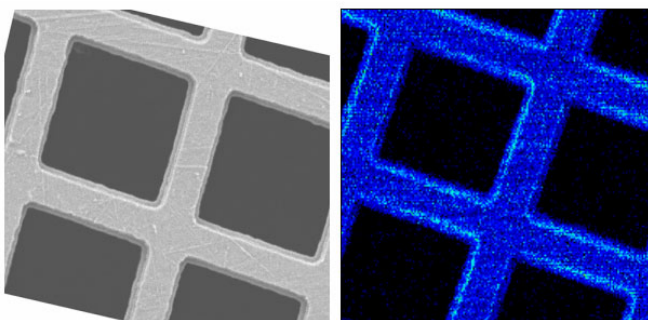


図 6 オブジェクトサイズとビームサイズの関係

図 7にNi1000メッシュの電子顕微鏡とマイクロビームシステムで取得した二次電子像(SEM)を示す。オブジェクトサイズは10×25ミクロンである。電子顕微鏡による二次電子イメージと同様に1ミクロンに満たないメッシュのステップや、コーナーの丸みについても明瞭に確認できている。数100nmの分解能が得られていることが分かる。



Electron Microscope      Proton Microbeam

図 7 Niメッシュの二次電子像

(左：電子顕微鏡、右：陽子マイクロビーム)

一方で、実試料のイオンビーム分析の際に、ビーム径を1ミクロン以下に出来ない場合が見られた。この原因は、グリッドシャドー法により突き止められた。ビーム径が1ミクロンを切れない場合の

GridShadowパターンを示す。単純なSextupolefieldだけではなく、それ以上の高次成分と混合したような複雑な寄生成分が見られた。これによってビームが絞れなかったと考えられる。この原因は、RBS分析のためのアニュラー型のSi半導体検出器によるものであった。この検出器は、ビームの透過穴径が4mmと小さいばかりでなく、内側にパイプが通っており、これらの持つ磁性によって多重極成分の混入があるのではないかと考えられる。そこで、透過穴がより大きく、内側にパイプが通っていないキャンベラ製のイオンインプラ型のアニュラー検出器に交換した。その結果、寄生磁場による多重極成分の混入が認められなくなり、分析においてもサブミクロンビームでの分析が可能となった。



図 8 寄生磁場がある場合のグリッドシャドーパターン

#### 4. まとめ

生体・植物試料の細胞レベルでの元素、形態分析等を行うため、マイクロビームと複合的なイオンビーム分析手法を組み合わせた、マイクロビーム分析システムの開発を行った。マイクロビームは調整と寄生磁場の除去等により、0.4×0.4ミクロンで数10pAを達成することが出来た。分析は大気中でも真空中でも可能であり、PIXE分析のみならず、RBSによる軽元素分析、off-AxisSTIMによる水素分析を組み合わせ、全元素の分析が可能となった。またDirectSTIMによる密度分析のほか、SEMによる形態分析も可能となった。現在、医学、環境学への応用が進められている。

#### 参考文献

[1] S.Matsuyama et.al., Nucl. Instr. and Meth., **B210**, 59-64, (2003)  
 [2] D.N.Jamieson and G.J.F.Legge, Nucl. Instr. and Meth. **B29** (1987) 544  
 [3] G.W.Grime et.al., Nucl. Instr. and Meth. **B54** (1991) 52  
 [4] S.Matsuyama et.al., Int. J. of PIXE, **14** (1&2), 1-8 (2004)  
 [5] S.Matsuyama et.al., Int. J. of PIXE, **15** (1&2), 41-46 (2005)  
 [6] S.Matsuyama et.al., Int. J. of PIXE, **15** (3&4), 257-262 (2005)  
 [7] K. Ishii et.al., Int. J. of PIXE, **15** (3&4) (2005) 111  
 [8] D.N.Jamieson, J.Zhu, Y.Mao, R.Lu,Z.Wang and J.Zhu, Nucl. Instr. and Meth. **B104** (1995) 86