

国立研究開発法人 産業技術総合研究所

# 分析計測標準研究部門 第4回シンポジウム

極限計測・分析が加速する  
研究開発イノベーション

JASIS2018コンファレンス

## 報告集

日時：2018年9月7日(金)10:00～15:30

場所：幕張メッセ国際会議場 国際会議室

主催：産業技術総合研究所 計量標準総合センター  
分析計測標準研究部門



国立研究開発法人  
産業技術総合研究所



国立研究開発法人 産業技術総合研究所

分析計測標準研究部門

第4回シンポジウム

「極限計測・分析が加速する  
研究開発イノベーション」

JASIS2018 コンファレンス

報告集

2018年9月7日（金）  
幕張メッセ国際会議場 国際会議室





## 分析計測標準研究部門第4回シンポジウム報告集の発刊にあたって

産業技術総合研究所計量標準総合センター分析計測標準研究部門の第4回シンポジウムを、JASIS 2018のコンファレンス（平成30年9月7日（金）10:00～15:30、幕張メッセ国際会議場 国際会議室）として開催することができました。ご多忙のなか本シンポジウムにご参加いただきました皆様、ならびに、シンポジウムの開催にご尽力いただきました関係者の皆様に深く御礼申し上げます。

当研究部門では、音響・超音波、放射線、中性子線に関する国家標準の開発・維持・供給を行う一方で、各種量子線、極短パルスレーザー光、イオンビーム、超音波などを用いた先端計測技術を研究開発し、新材料の開発において不可欠な基礎物性値、欠陥・不純物の形状・濃度・分布、機能発現のメカニズムなどに関する計測データを提供することによる産業界への橋渡しを目指しています。

今回のシンポジウムでは「**極限計測・分析が加速する研究開発イノベーション**」を講演テーマとして取り上げました。最初に、大阪大学大学院工学研究科の尾崎典雅先生に「パワーレーザーとX線自由電子レーザーを用いた極限環境下の物質ダイナミクス観察」のご講演の中で、超高速異常弾性変形やレーザーアブレーションの初期過程の格子状態観察など、極限環境下における物質計測の最前線について紹介いただきました。引き続き当研究部門の超高強度X線パルスレーザーのパワー測定や陽電子を用いる超微細欠陥の評価技術に関する研究開発の事例を紹介いたしました。また後半では、当所計量標準総合センター物理計測標準研究部門の福田大治量子光計測研究グループ長が「単一光子レベルの極微弱光を観測する『光子顕微鏡』の開発」について紹介いたしました。次いで、当研究部門の光干渉断層イメージング技術、超微細表面物性の定量計測、超高温域の炭素系材料の物性計測などの極限計測技術の事例を紹介いたしました。さらに、ポスターセッションにて、当研究部門全般の最新の研究成果を紹介いたしました。

本報告集はシンポジウム当日の講演資料、ポスター発表資料を収録したものです。今回のシンポジウムが、皆様方への情報提供、ならびに今後の協力関係構築の契機となれば幸いです。

今後も内外機関との連携構築に向けてシンポジウムや公開セミナーを積極的に開催して情報発信を行っていく所存です。当研究部門の研究活動に対しましてご理解いただき、引き続きご指導、ご支援を賜りますよう、よろしくお願い申し上げます。

2018年10月

産業技術総合研究所 計量標準総合センター  
分析計測標準研究部門  
研究部門長 野中 秀彦

## 目次

報告集の発刊にあたって	1
野中 秀彦	
プログラム	5
.....口頭発表.....	
【依頼講演】「パワーレーザーとX線自由電子レーザーを用いた 極限環境下の物質ダイナミクス観察」	9
尾崎 典雅	
【依頼講演】「単一光子レベルの極微弱光を観測する『光子顕微鏡』の開発」	21
福田 大治	
「分析計測標準研究部門の概要」	28
野中 秀彦	
「先端研究を支える超高強度 X 線パルスレーザーのパワー測定	32
田中 隆宏	
「陽電子を用いる超微細欠陥の評価技術」	41
オローク ブライアン	
「量子現象を模倣した光干渉断層イメージング技術の研究」	53
白井 智宏	
「超微細表面物性の定量計測」	65
井藤 浩志	
「超高温域の炭素系材料の物性計測とその結果の分析」	78
岩下 哲雄	

……ポスター発表……

#### A.医療・環境を支える計測標準技術

- 「医用超音波機器の安全性評価に資する高出力超音波パワー標準開発の必要性」…………… 93  
内田 武吉
- 「水晶体被ばく線量測定に用いる線量当量換算係数の決定と実用」…………… 98  
加藤 昌弘
- 「アラニン線量計を用いた医療用炭素線の線量測定技術」…………… 104  
山口 英俊
- 「先進医療開発を支える高精度中性子計測技術」…………… 110  
増田 明彦
- 「ラドン放射能モニタ校正のためのガス循環システム」…………… 117  
古川 理央
- 「レーザー共鳴イオン化による超高感度質量分析法の開発:ストロンチウム同位体分析への適用」 122  
永井 秀和

#### B. 製造現場を支える精密計測技術

- 「半無響室の性能評価における音源の指向性の影響」…………… 127  
山田 桂輔
- 「厚さ計等工業計測機器に装備される<sup>147</sup>Pmの放射能絶対測定」…………… 132  
佐藤 泰
- 「水晶振動子型水素センサ・濃度計の屋外計測での安定性改善」…………… 137  
鈴木 淳
- 「位相コントラスト法を用いたX線検査装置の開発」…………… 142  
安本 正人
- 「超近接配置欠陥の非破壊による分離判定評価」…………… 147  
山本 哲也
- 「超微小領域における欠陥分布の可視化技術」…………… 152  
王 慶華
- 「実用材料加工のためのレーザー加工システムならびに加工評価技術の開発」…………… 158  
田中 真人

### C. 新材料開発を支える先端計測分析技術

「産業利用を目指した小型電子加速器中性子施設とその利用の研究」……………	163
木野 幸一	
「ナノ空隙評価のための高強度低速陽電子ビーム利用施設」……………	169
満汐 孝治	
「高強度レーザーを用いたガンマ線渦の発生」……………	174
平 義隆	
「二光子ー光電子収量分光法(2P-PYS)の開発:機能性材料の励起状態の評価」……………	179
細貝 拓也	
「イオン液体を用いた反応性クラスター集束イオンビーム源の開発」……………	184
藤原 幸雄	
「先端分析計測でナノ材料などの開発を支援」……………	189
齋藤 直昭	

## - プログラム -

開催日時 9月7日(金) 10:00~15:30

【午前の部】 司会：副研究部門長 時崎 高志

- |             |  |                                       |
|-------------|--|---------------------------------------|
| 10:00       | 開会   | 計量標準総合センター長<br>臼田 孝                   |
| 10:05       | 分析計測標準研究部門の概要                                    | 分析計測標準研究部門長<br>野中 秀彦                  |
| 10:15       | 【依頼講演】パワーレーザーとX線自由電子レーザーを用いた<br>極限環境下の物質ダイナミクス観察 | 大阪大学大学院工学研究科<br>准教授<br>尾崎 典雅 様        |
| 11:00       | 先端研究を支える超高強度 X線パルスレーザーのパワー測定                     | 放射線標準研究グループ<br>主任研究員<br>田中 隆宏         |
| 11:30       | 陽電子を用いる超微細欠陥の評価技術                                | X線・陽電子計測研究グループ<br>主任研究員<br>オローク ブライアン |
| 12:00-12:45 | 休憩(昼食) & 【ポスター発表】                                |                                       |

【午後の部】 司会：副研究部門長 権太 聡

- |             |                                       |                                     |
|-------------|---------------------------------------|-------------------------------------|
| 12:45-13:15 | 【ポスター発表】(コアタイム) 分析計測標準研究部門の研究紹介       |                                     |
| 13:15       | 【依頼講演】単一光子レベルの極微弱光を観測する「光子顕微鏡」の<br>開発 | 物理計測標準研究部門<br>量子光計測研究グループ長<br>福田 大治 |
| 14:00       | 量子現象を模倣した光干渉断層イメージング技術の研究             | ナノ分光計測研究グループ<br>上級主任研究員<br>白井 智宏    |
| 14:30       | 超微細表面物性の定量計測                          | ナノ顕微計測研究グループ<br>主任研究員<br>井藤 浩志      |
| 15:00       | 超高温域の炭素系材料の物性計測とその結果の分析               | 非破壊計測研究グループ<br>上級主任研究員<br>岩下 哲雄     |
| 15:30       | 閉会                                    | 分析計測標準研究部門長<br>野中 秀彦                |



# 口頭発表表





## 【依頼講演】

# パワーレーザーと X 線自由電子レーザーを用いた 極限環境下の物質ダイナミクス観察

大阪大学 大学院工学研究科 尾崎 典雅

Wigner と Huntington は水素に極めて高い圧力を加えると分子が解離した原子の状態となり、導電性の金属になると予測した。また、超高压の固体水素では電気抵抗がなくなり、超伝導状態になるとの予測が Ashcroft によってなされた。室温超電導は未だ実現されていないものの、多くの物質が超高压下で超伝導体となることが知られている。すなわち超高压の方法は、通常の状態では見ることのできない物質の振る舞いを探るためのアプローチであるといえる。超高压の実験や計算の結果から、新しい物質の特性や機能を引き出すためのヒントを得ることができる。物質・材料科学だけでなく、地球科学や惑星科学をはじめ、高圧力下の物質を研究対象とする分野は多く、さらに最近では食品や生物分野での高圧の利用も活発になっている。極限環境を生成するための技術やそれを観測・診断する技術に関わる研究開発を内包した極限科学という分野横断的な学術として発展を続けており、日本が強みを有する分野でもある。

ここで述べるパルス的な圧力波を用いる動的な超高压、特に衝撃波を用いた衝撃超高压法では、静的な超高压法とは異なり、特殊な高压容器を必要としない。したがって、その発生圧力はアンビルなどの機械力学的な材料強度に制限されないという特徴がある。そのためこの動的な方法は、“人類は高密度エネルギーをどのようにすれば得ることができるか？”という問いのためにしばしば用いられてきた。レーザーパルス整形をはじめとする動的圧縮過程の温度制御技術(エントロピー抑制)も飛躍的に向上し、物質を凝縮相に止めたまま超高压状態を生成することも可能になっており、それがきっかけとなって第一原理的量子力学計算による新しい極超高压相の提案も相次いでいる。さらには、X 線自由電子レーザー(XFEL)が決定的なインパクトを持って登場し、かつてダイヤモンドアンビルセルによって起こされたパラダイムシフトが、パワーレーザー技術に立脚して起こりつつあるように思われる。ここで改めて強調したいことは、高強度レーザーと XFEL の融合が、動的超高压と静的超高压や、高エネルギー密度科学と凝縮物性科学や物質材料科学、惑星科学などの学際的融合を加速しているということである。

我々は最近、惑星内部の物質分化や月の形成に関わるような大規模衝突(ジャイアントインパクト)時のマグマに相当する数 100 万気圧領域のケイ酸塩衝撃圧縮データを取得し、極限のマグマに特異の“反応”が現れることを見出した<sup>1</sup>。ショック溶融したフォルステライト( $Mg_2SiO_4$ )は、超高温高压の環境で均一なメルトから“不一致”状態となり、MgO 成分が分離し、結晶化-高压構造相転移する。ジャイアントインパクトで生成する極限的マグマの振る舞いにおいても化学反応とそれに起因するミクロな構造が影響を及ぼす。このようなレーザーでしか生成できないような極限環境下の物質の構造や振る舞いが今まさに調べられようとしている。

2018 年 7 月現在、高強度レーザーと XFEL を組み合わせた研究計画は、米カリフォルニア、SLAC 国立加速器研究所の LCLS(Linac Coherent Light Source)、日本の播磨、理化学研究所理化学研究所放射光科学研究センターの SACLA(Spring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser)で展開されており、それに続く形で独ハンブルグ、European XFEL でも早々に開始される予定である。超高輝度 X 線光源である XFEL とハイパワーレーザーを組み合わせたポンププローブ実験により、動的超高压研究者にとって長年の夢であったミクロな構造のその場実時間観察が当たり前になりつつある。我々の研究グループは 2013 年以来、ロングパルスおよびショートパルスの両パワーレーザーを SACLA とカップルさせた高エネルギー密度科学研究のプラットフォームの構築を段階的に進めてきた。2015 年度には SACLA で初めて、地球下部マントル深部に相当する 100 万気圧超の圧力発生を記録し、最近では地球の中心を優に超えるような圧力や温度の領域で、様々な物質に合わせて条件を変化させながら実験することが可能になってきている。本講演では以下のトピックを中心に我々のアクティビティを紹介できればと思う。

## HOPG の超高速異常弾性変形とロンズデーライト生成

レーザーを用いた圧縮方法では、極めて短い時間に超高圧力が生成されるため、従来の圧縮法では実現不可能な高歪み速度場が衝撃波面において形成される。このような超高歪み速度の極端条件において、一般に常識とされる降伏応力や弾性限界をはじめとした材料の機械力学的特性を遥かに超えた“異常圧縮状態”の生成が一部のマクロ量の観測結果から示唆されている。XFEL と高強度レーザーを組み合わせれば、このような異常圧縮格子状態を原子レベルで直接可視化することができる。

我々は、グラファイト層と垂直方向に衝撃波が伝搬するように高強度レーザーを照射し、XFEL によるその場観察によって、グラファイト層間距離の圧縮および高密度相への相転移の様子を直接捉えた<sup>2</sup>。実験によって観察されたグラファイトの層間距離の最大圧縮率は、弾性限界の状態を遥かに超えて 20 % に達した。また高品質の高配向グラファイト (HOPG) では、衝撃波が伝搬し始めてからピコ秒のタイムスケールでロンズデーライト (六方晶ダイヤモンド) へと高速相転移する様子が観察された。グラファイトがなす特徴的な層構造が、一軸方向に閾値以上に弾性圧縮されることで層間の共有結合が生まれ、グラファイトの層状構造が瞬間的に破壊されることで直接相転移に至ったと考えられる。この新しい相転移メカニズムは、従来に比べ明らかに短い時間・低い圧力で高密度相を生成している。様々な物質で異常弾性変形起因の相転移が存在し、これまでとは全く異なる新物質状態の探索が進展する可能性がある。

## レーザー加工学理研究への応用展開 -レーザーアブレーション初期過程の格子状態観察-

この新しい実験プラットフォームを広く活用しようという動きも活発になっている。レーザー加工は様々な材料や用途、環境で広く用いられており、その手法は 1000 を超えて細分化されるともいわれる。レーザー自体のポテンシャルの高さから、応用への普及速度が早い一方で、加工に関連する体系立てられた学理的研究の試みは十分になされていない。高強度のレーザー照射において普遍的に現れるレーザーアブレーション自体が、レーザーのパルス幅やパルス波形、対象とする物質に大きく依存し、さらには固体-液体-気体-プラズマの全ての相をまたがる過渡的で複雑なプロセスであることなど、“加工”として統一的に理解することが困難であることを想像させる。

我々は XFEL という全く新しい診断のツールを用いて、レーザーアブレーション、衝撃圧縮波形成、表面改質プロセス、などの理解に向けた新たな実験を開始した。ピコ秒スケールで刻々と格子状態が変化する様子を定量的に理解するために、超高速 X 線回折ポンププローブ実験を実施している<sup>3,4</sup>。固体からプラズマまでを含む系における極短時間・高速の熱・エネルギー輸送の様子は、多くの加工において普遍的であるが未解明であることから、Society 5.0 と呼ばれる超スマート社会の実現に重要な役割を担う次世代レーザー加工においては不可欠な実験的研究の展開である。

## 超高速衝撃による破断破壊のマイクロ観察

高強度レーザーの方法は、前述のような秒速 20 km をも超える極限衝突環境を模擬することに応用できる。単位時間あたりの変形率である“歪み速度”が  $10^9$  /s を超えるような極限場が形成されるとき、物質がどのように変形し破壊していくのかは、当然のことながら惑星科学のみならず物質材料科学とその応用に深く関連した重要な研究テーマである。このような超高速衝突の問題は、生活で頻繁に目にする現象ではないが、航空機や船舶、発電プラントや宇宙ステーションなど、ひとたび問題が発生すると甚大で深刻な被害が予想される構造物や建設物、およびそれを構成する材料において検討されるべき課題である。

我々は、高硬度・高融点の金属であるタンタルを用いた高歪み速度衝撃圧縮環境における破断破壊現象の可視化実験を実施した。超高速下で特徴的な、材料の破壊応力のしきい値を超えた場合の破断的破壊 (スポール破壊) において、急激な引張り応力によって突然破断した“バネ”の端面が元の状態に戻ろうとしている様子が原子レベルで可視化されており、いわば“スポールショック”と呼ぶような新たな圧縮波が、破断した破片の中を伝播していくこと、マイクロな破断を意味するサブマイクロサイズの“マイクロボイド”が急激に増殖することなどが明らかになっている<sup>5</sup>。

<sup>1</sup> T. Sekine, N. Ozaki, K. Miyaniishi *et al.*, *Science Adv.* **2**, e1600157 (2016).

<sup>2</sup> K. Katagiri, N. Ozaki, T. Matsuoka *et al.* (submitted).

<sup>3</sup> N. J. Hartley, N. Ozaki, T. Matsuoka *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 071905 (2017).

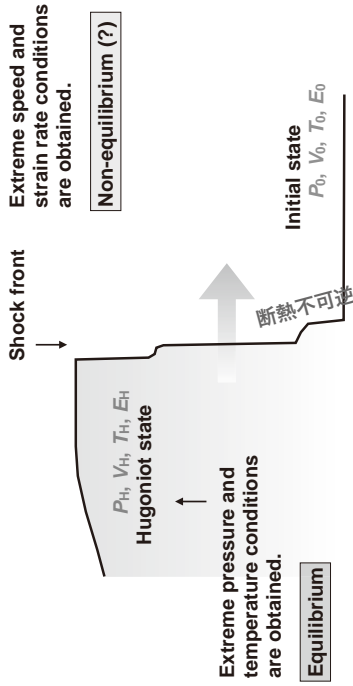
<sup>4</sup> T. Pikuz, A. Faenov, N. Ozaki *et al.*, *J. Appl. Phys.* **120**, 035901 (2016).

<sup>5</sup> B. Albertazzi, N. Ozaki, V. Zhakhovsky *et al.*, *Science Adv.* **3**, e1602705 (2017).





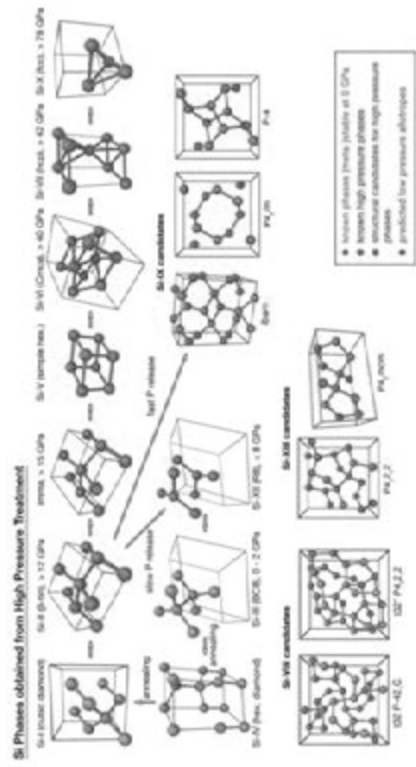
# ハイパワールーザーによる動的圧縮は超高压・高密度・高温のWDM極限環境を生成する優れた方法



5

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

# 結晶多形を有するシリコン

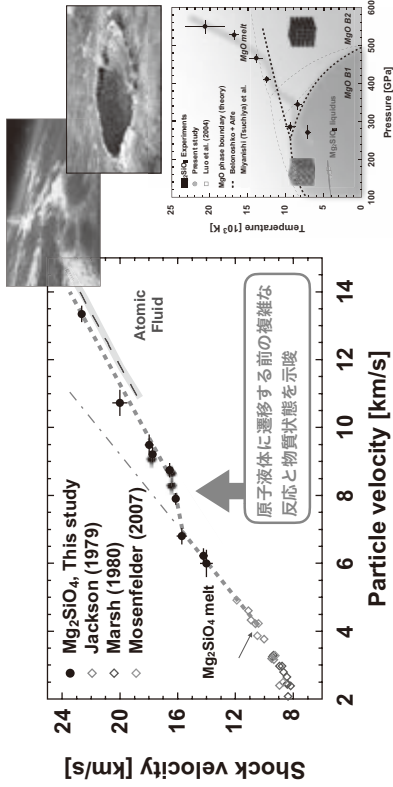


Wipermann et al., App. Phys. Rev. 3, 040807 (2016).

7

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

# 地球型惑星形成時のケイ酸塩メルト (極限状態のマグマ) において複雑な化学反応を示唆



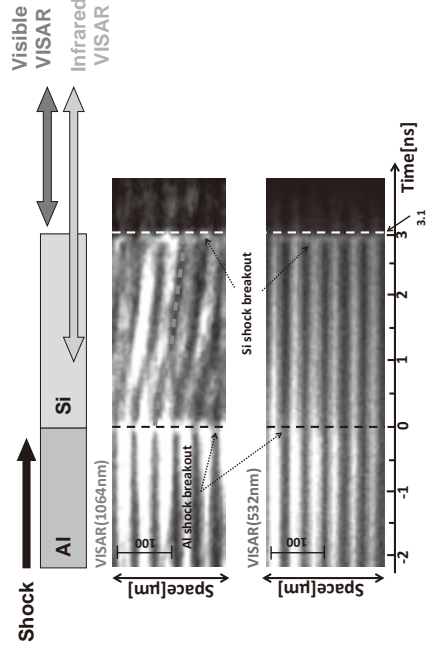
Science Advances 2, e1600157 (2016)

Phys. Rev. E 92, 23103 (2015)

6

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

# 赤外光をプローブとした計測により、金属シリコンの状態の生成を世界で初めてその場観察により実証



Under review.

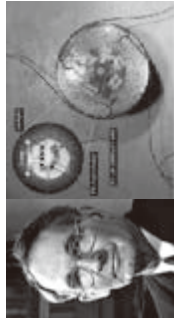
8

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

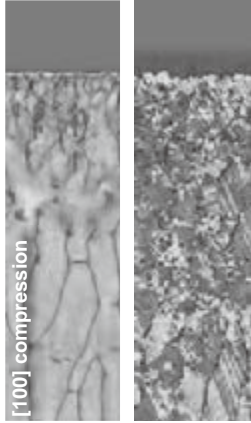
## 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められる

Three W's and One H?

- What structure is created?
- When is structure created?
- Where is structure created?
- How are structure created?



Shock front



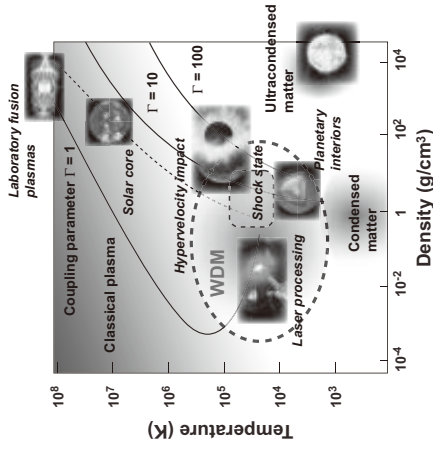
Is that state different from or similar as static?

9

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918



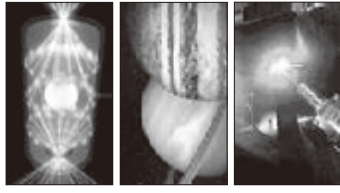
## Warm Dense Matter (WDM): 基礎科学から応用まで様々な状況で現れる複雑な物質の世界



- 高圧力の科学と技術 27, 129 (2017).
- レーザー研究 45, 480 (2017).

10

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918



## Summary/Outline

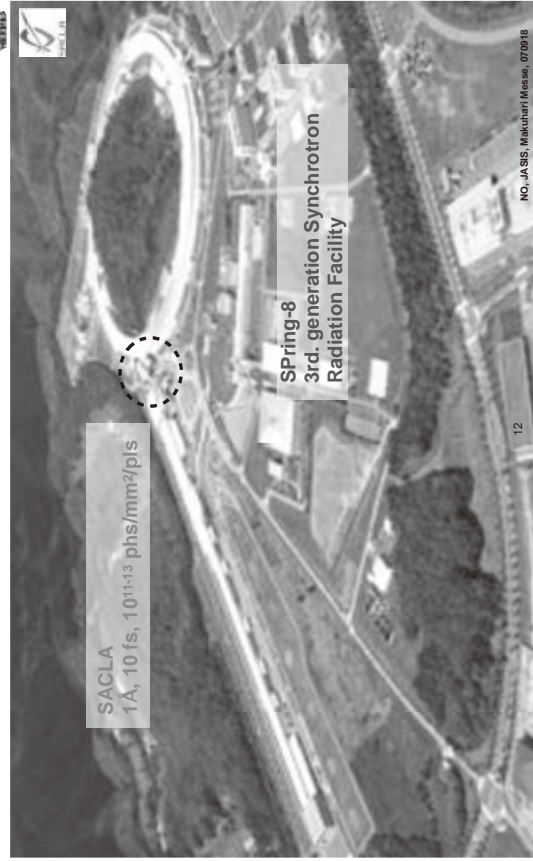
- 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められている。
  - 現代の物質材料科学に新たな“多様性”を提供しうる。
- ハイパワーレーザーとXFELの融合による量子ビーム技術、高エネルギー密度科学の展開
  - 超高速相転移：HOPGの超高速異常弾性変形とロンズデライト生成
  - レーザー加工学理研究への応用展開 - レーザーアブレーション初期過程の格子状態観察 -
  - 超高速衝撃（衝突）による破断破壊のその場ミクロ観察

11

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918



## SACLA: Spring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser



12

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918





### パワーレーザーとXFELの融合で、物質の構造変化をフェムト秒時間分解・原子レベルで可視化

### パワーレーザーとXFELの融合で



$\theta$ : 散乱角  
 $d$ : 結晶面間隔  
 $n$ : 屈折率  
 $\lambda$ : 波長  
 $n$ : 屈折率

Bragg の式：  
 $2d \sin \theta = n\lambda$

(b)

入射光線  
 反射光線  
 $n\lambda$   
 $G(002)$   
 $d \sin \theta$   
 $d$   
 圧縮方向  
 (C-axis)

(116) (113) (104)

\*  $\sim 0.05^\circ$  detector resolution

© T. Okuchi (Okayama)  
 NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## Summary/Outline

- 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められている。
  - 現代の物質材料科学に新たな“多様性”を提供しよう。
- ハイパワーレーザーとXFELの融合による量子ビーム技術、高エネルギー密度科学の展開
  - 超高速相転移：HOPGの超高速異常弾性変形とロンズデーライト生成
  - レーザー加工学理研究への応用展開 - レーザーアブレーション初期過程の格子状態観察 -
  - 超高速衝撃（衝突）による破断破壊のその場ミクロ観察

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## 超高歪み速度の圧縮波前駆部において、通常の限界を超える異常弾性圧縮状態が存在する可能性

Free surface velocity [km/s]

62 GPa 34 GPa 32 GPa 24 GPa 8 GPa

Time, shifted [ns]

19

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## 超高速の圧縮で層状物質を過度に、理想的な1次元で圧縮すると何が起きるか？

Understanding of the behavior of 2D system, like graphene, is a key to develop new materials toward high-T superconductivity and polymer conductivity.

Poisson's effect prevents graphite from ideally and highly 1D compression.

28.7 GPa 19.6 GPa 14.5 GPa 10.9 GPa

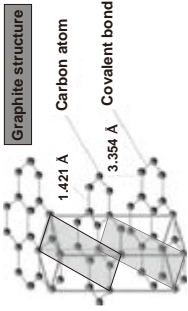
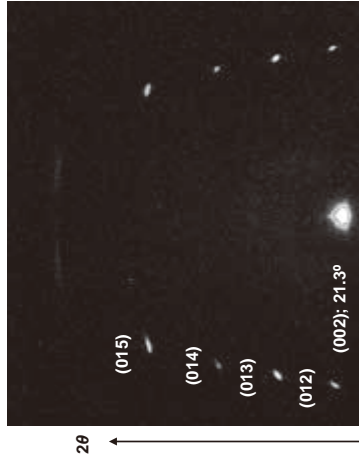
d value [Å]

Photon energy [keV]

Yagi et al. Phys. Rev. B (1992).  
 NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

In preparation.

### 30万気圧（通常の弾性限界の6倍）に相当する21%の理想的弾性圧縮を実現



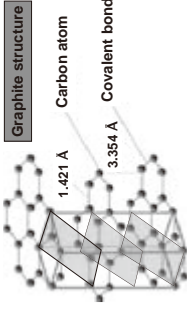
- Conventional HEL
- ~8% compression
  - ~5.1 GPa
- Anomalous compression
- 21% max 1D compression
  - 2.654 Å inter-layer distance
  - ~30 GPa

In preparation.

21

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

### 30万気圧（通常の弾性限界の6倍）に相当する21%の理想的弾性圧縮を実現



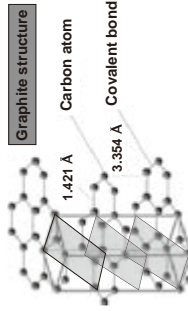
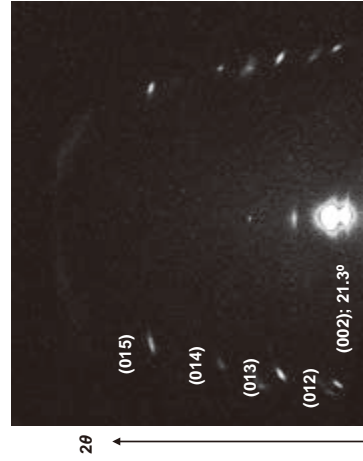
- Conventional HEL
- ~8% compression
  - ~5.1 GPa
- Anomalous compression
- 21% max 1D compression
  - 2.654 Å inter-layer distance
  - ~30 GPa

In preparation.

22

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

### 30万気圧（通常の弾性限界の6倍）に相当する21%の理想的弾性圧縮を実現



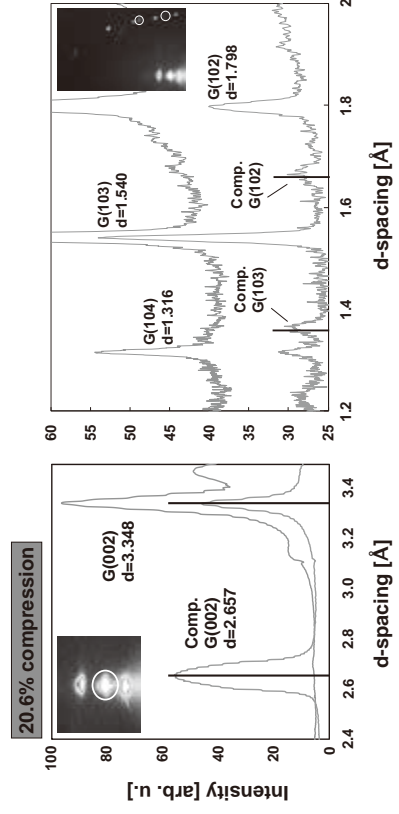
- Conventional HEL
- ~8% compression
  - ~5.1 GPa
- Anomalous compression
- 21% max 1D compression
  - 2.654 Å inter-layer distance
  - ~30 GPa

In preparation.

23

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

### 30万気圧（通常の弾性限界の6倍）に相当する21%の理想的弾性圧縮を実現



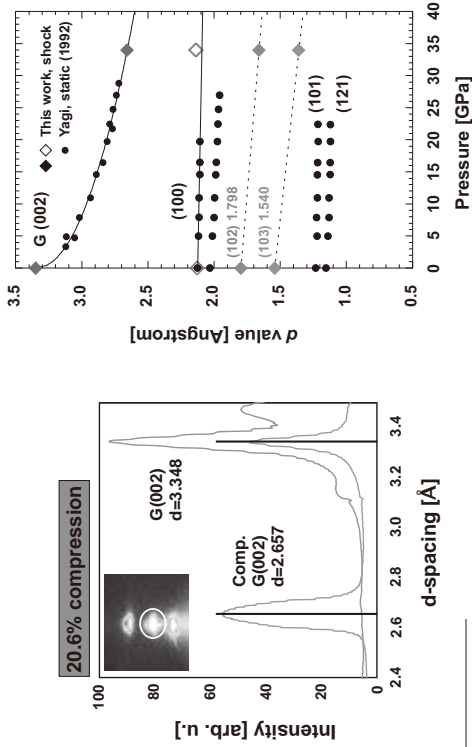
In preparation.

24

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918



### 30万気圧（通常の弾性限界の6倍）に相当する21%の理想的弾性圧縮を実現

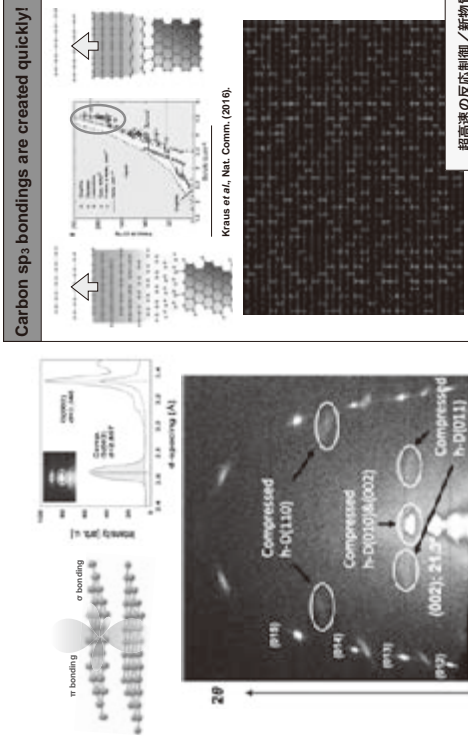


In preparation.

25

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

### 弾性限界を超える超高速圧縮で起こる化学反応、誘起される六方晶ダイヤモンドへの相転移を初めて観察



In preparation.

26

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

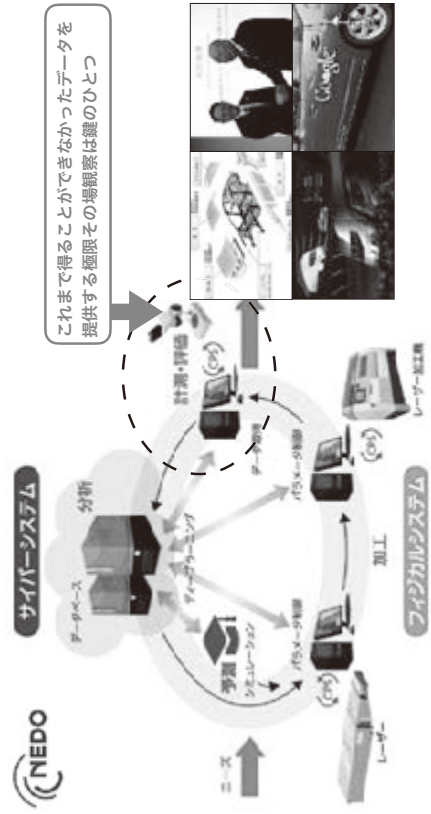
### Summary/Outline

- 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められている。
  - 現代の物質材料科学に新たな“多様性”を提供しうる。
- ハイパワーレーザーとXFELの融合による量子ビーム技術、高エネルギー密度科学の展開
  - 超高速相転移：HOPGの超高速異常弾性変形とロンズデライト生成
  - レーザー加工学理研究への応用展開 - レーザーアブレーション初期過程の格子状態観察 -
  - 超高速衝撃（衝突）による破断破壊のその場ミクロ観察

27

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

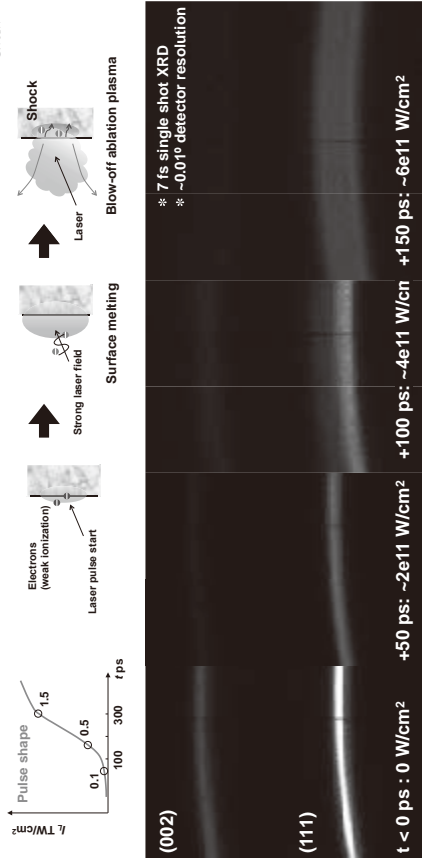
### 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められる



28

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## レーザーブレーション、レーザーシヨック形成の超初期過程を超高速X線回折で明らかに

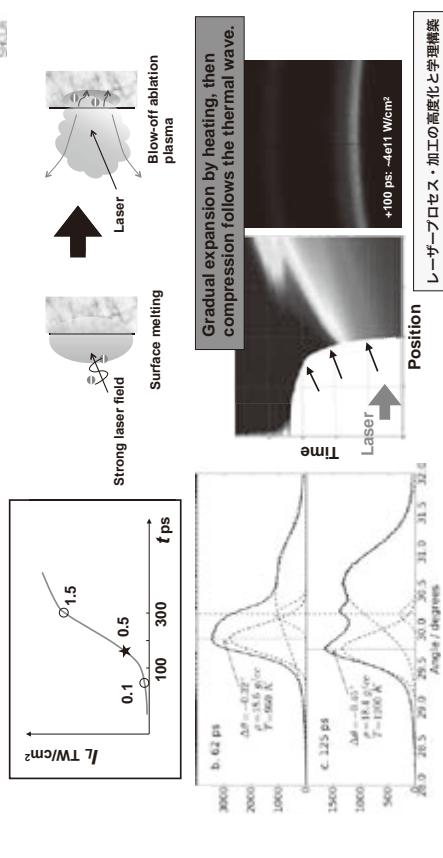


• Appl. Phys. Lett. 110, 071905 (2017).  
• J. Appl. Phys. 120, 035901 (2016).

29

NO, JASIS, Makuhari Messe, 070918

## 10<sup>10</sup>-10<sup>11</sup> W/cm<sup>2</sup> の領域で状態の劇的な変化；2段階の急激な表面の膨張と試料内部へ圧縮波駆動

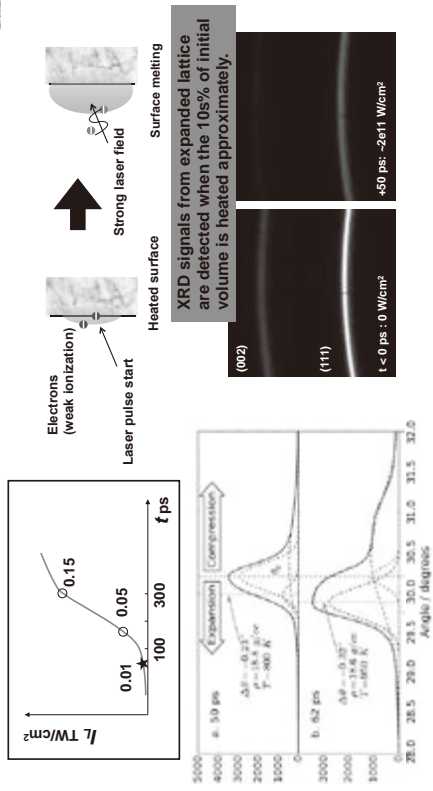


Appl. Phys. Lett. 110, 071905 (2017).

31

NO, JASIS, Makuhari Messe, 070918

## ピコ秒-10<sup>10</sup> W/cm<sup>2</sup> 程度までの領域では固体試料内部を熱が伝播していく



Appl. Phys. Lett. 110, 071905 (2017).

30

NO, JASIS, Makuhari Messe, 070918

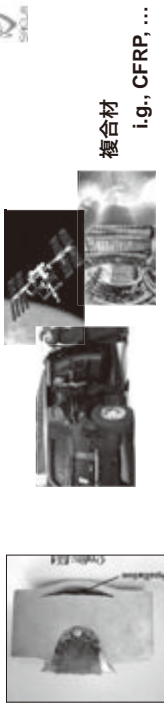
## Summary/Outline

- > 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められている。
- > 現代の物質材料科学に新たな“多様性”を提供しよう。
- > ハイパワーレーザーとXFELの融合による量子ビーム技術、高エネルギー密度科学の展開
- > 超高速相転移: HOPGの超高速異常弾性変形とロンズデーライト生成
- > レーザー加工学研究への応用展開 - レーザーアブレーション初期過程の格子状態観察 -
- > 超高速衝撃(衝突)による破断破壊のその場ミクロ観察

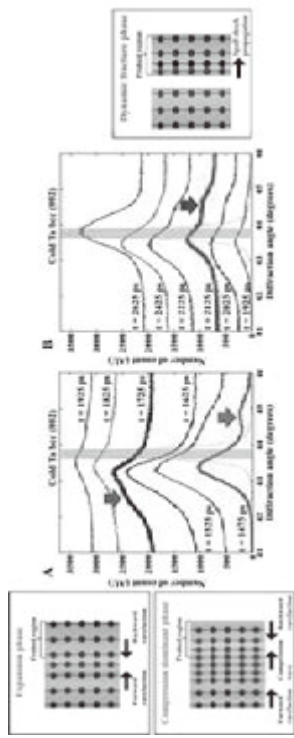
32

NO, JASIS, Makuhari Messe, 070918

超高速の衝突が起こると材料表面はもとより、  
しばしばその裏面に深刻な被害がでる



複合材  
i.g., CFRP, ...

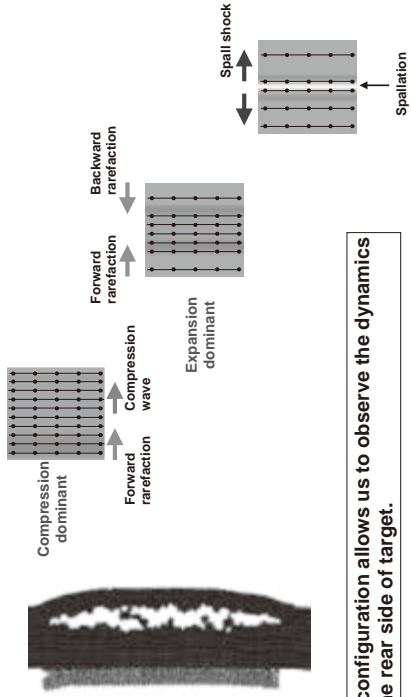


Science Advances 3, e1602705 (2017).

33

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

材料内部で希薄波が相互作用し、歪み速度  $10^9 \text{ s}^{-1}$   
レベルの引張応力状態が生成する



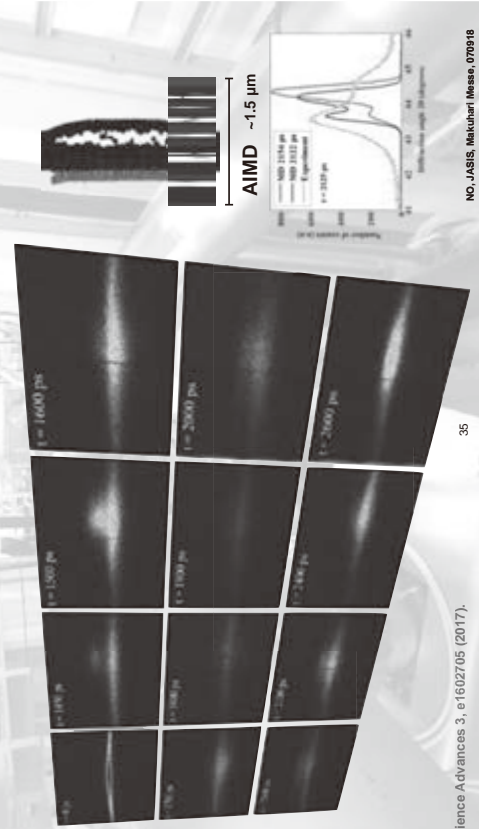
The configuration allows us to observe the dynamics  
on the rear side of target.

Science Advances 3, e1602705 (2017).

34

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

パワーレーザーとXFELの融合で、超高速の材料の  
破壊をフェムト秒時間分解・原子レベルで可視化

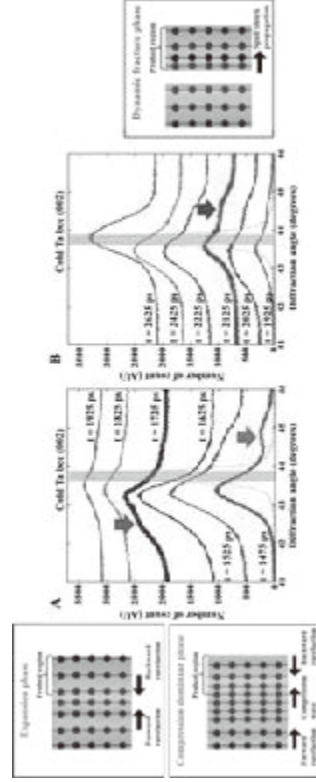


Science Advances 3, e1602705 (2017).

35

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

超高速の破断が起きたことを示唆する、フラグメント  
内を伝播する“スプールシヨック”を初めて観察

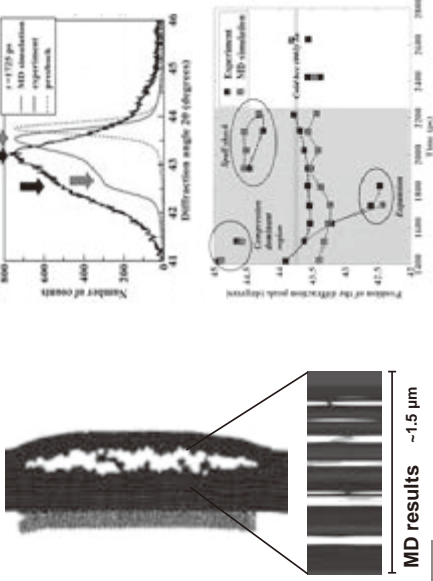


Science Advances 3, e1602705 (2017).

36

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## 大規模シミュレーションでしか検討できなかった 時間・空間のスケールで現象を直接比較を可能に

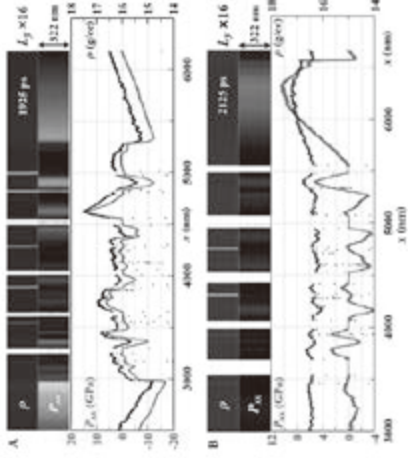


Science Advances 3, e1602705 (2017).

37

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## 急激なマイクロボイドの増殖が超高速歪み下の破壊 (スポール破壊) を引き起こす



材料のダイナミックな振舞いの高精度モデル化

Science Advances 3, e1602705 (2017).

38

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918

## Summary and perspective

- 超高速の動的極限環境で物質の姿と振舞いを明らかにするための先端極限計測が求められている。
- 現代の物質材料科学に新たな“多様性”が生まれている。
- ハイパワーレーザーとXFELの融合による量子ビーム技術、高エネルギー密度科学の展開が開始されている。
- 物質材料、レーザープラズマ、地球惑星などの分野へ加速度的に波及
- これまで大規模の数値シミュレーションでしか検討できなかった時間・空間のスケールで現象を直接比較を可能に
- 超高速相転移：HOPGの超高速異常弾性変形とロンズデライト生成
- レーザー加工学研究への応用展開 - レーザーアブレーション初期過程の格子状態観察 -
- 超高速衝撃（衝突）による破断破壊のその場マイクロ観察

39

NO. JASIS, Makuhari Messe, 070918



## 【依頼講演】

### 単一光子レベルの極微弱光を観測する「光子顕微鏡」の開発

物理計測標準研究部門 量子光計測研究グループ 福田 大治<sup>1</sup>、丹羽 一樹  
服部 香里、今野 俊生、鷹巢 幸子、小林 稜<sup>1</sup>  
日本大学<sup>1</sup> 井上 修一郎

光を極限にまで減弱していくと、“光子”と呼ばれる光を構成する最小単位に行き着く。光子は、粒子性と波動性の二面性があるとともに、電磁波の波長に応じた特定のエネルギーを持つ。この光子を効率よく検出し、光子毎にそのエネルギー情報まで捉えることが出来れば、究極的な検出感度で光子を分光できる光検出技術が達成できる。我々は、超伝導現象を用いた光子検出技術に取り組み、この高精度光検出技術をバイオイメージングや量子情報通信などの様々な精密計測に応用する研究を行っている。本発表では、光子を分光測定可能な光検出素子を搭載した「光子顕微鏡」による極微弱な蛍光・発光の観察が可能なイメージング装置の開発事例を紹介する。

我々は、超伝導転移端センサ(Superconducting Transition Edge Sensor; TES)と呼ばれる光検出素子をベースとした光子検出技術の開発<sup>1</sup>に取り組んでいる。TES は、カロリメータの一種であり、光子一個のエネルギーを熱として吸収し、その時に生じた温度上昇を TES 自身の抵抗変化として検出する。温度変化は、入射する光子のエネルギーに比例するため、TES は光子の到来・検出のみならず、その電磁波としての波長も同定できる。TES は、可視域から近赤外、通信波長帯など、一つの検出素子で広範な範囲に感度を持ち、また可視波長域～近赤外領域では暗計数が殆どゼロであるという利点がある。

我々は、この光子検出素子を走査型顕微鏡あるいは共焦点顕微鏡の光検出器として搭載し、極微弱な照明下でのサンプル観察、あるいは、単一光子レベルの微弱な蛍光・発光を観測可能なイメージング技術を開発している。広範な波長範囲の僅かな光子を感度よく捉えられるイメージング技術は、生細胞やナノスケール材料等の非侵襲観察に極めて有効である。特に、生細胞観察では、蛍光剤等を用いることなく非染色で対象試料の構造や生物学的な変化をありのままに観察できる技術の実現への期待が大きい。

現在、我々は、上記顕微鏡のプロトタイプにより1画素あたり光子数～20個以下のRGBイメージング<sup>2</sup>や1 μW以下の励起レーザーパワーでの細胞蛍光観察<sup>3</sup>を実証したところである。今後、可視～近赤外波長域のレーザーを励起源とした無染色細胞イメージングの実証へと展開していくことを計画している。

本研究は、JST, CREST, JPMJCR17N4の支援を受けたものである。

<sup>1</sup> D. Fukuda and et al., Opt. Express **19**, 870-875 (2011).

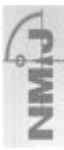
<sup>2</sup> K. Niwa, T. Numata, K. Hattori and D. Fukuda, Sci. Rep. **7**, 45660 (2017).

<sup>3</sup> D. Fukuda, K. Niwa, K. Hattori, S. Inoue, R. Kobayashi, T. Numata, in press on J. Low Temp. Phys., <https://doi.org/10.1007/s10909-018-1938-8>

## 単一光子レベルの極微弱光を 観測する「光子顕微鏡」の開発



産業技術総合研究所  
物理計測標準研究部門



量子光計測研究グループ  
福田大治



課題番号 JPM1CR17N4

平成30年9月7日(金) 幕張メッセ国際会議場 国際会議室

## はじめに

- 光子を用いた様々な高精度計測への展開
  - 光子 (photon) って何ですか？
  - どのように検出・測定しますか？
- 超伝導単一光子分光検出技術
  - 超伝導転移端センサ( TES)とは？
  - TESの性能
- 単一光子分光イメージング応用
  - 光子顕微鏡によるバイオイメーキング等への展開

## 光子(photon)とは

- 光子 ← 光の最小単位であり、究極的な計測対象
- 光は、波動性と粒子性の両方を合わせ持つ
  - 単一光子でも波の性質を失わず自身と干渉
  - 光電効果やコンプトン効果は、粒子性に由来

光量子仮説

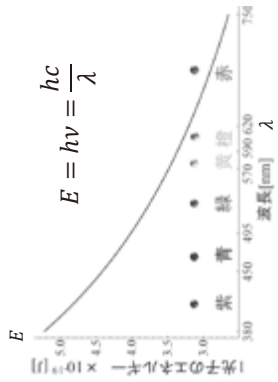
$$E = h\nu$$

1905年、「振動数の光は、 $h\nu$  というエネルギーの粒子(光子)の流れである」と提唱。



アルベルト・アインシュタイン  
1921年ノーベル賞(物理学) 受賞理由

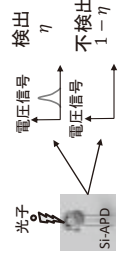
光のエネルギーは飛び飛びで、光の振幅は連続的な値をとることはできない。



## 光子を検出するには

- 単一光子検出器
  - 要求性能
    - 検出効率
    - 暗計数率
    - 分光特性
    - 時間ジッタ
    - 有感面積、等々
- 光電子増倍管(PMT)
- SiやInGaAsによるAPD
- EM-CCD

多くは到来型(ON-OFF型)の検知方式

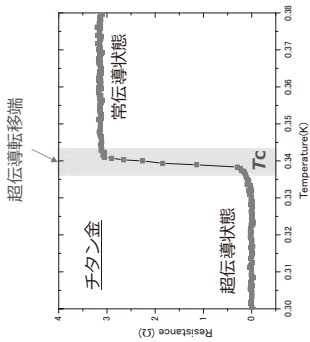


光子の波長(色)まで識別できる検出器は存在しない。

光子をほぼ理想的に検出できる技術を模索  $\rightarrow$  超伝導現象を用いた光子検出技術

## 超伝導現象とは？

物理計測標準研究部門

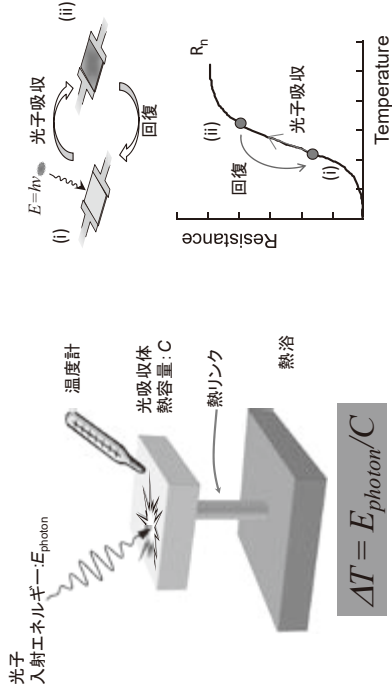


- 臨界温度 ( $T_c$ ) で電気抵抗がゼロになる現象。
- ニオブ、アルミ、チタンなどで発現する。  
(Nb: 9K, Al: 1K, Ti: 0.4K)
- 常伝導状態から超伝導状態への転移は、わずかに数mKの温度範囲で生じる。

臨界温度  $T_c = 0.34$  K

超伝導を利用して「光子」を検出する。

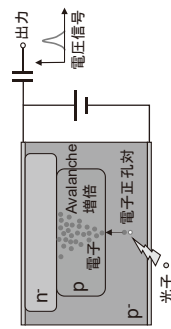
## 超伝導転移端センサ(TES)を用いた光子計測



- 入射光子のエネルギーを吸収。
- その際の温度上昇を超伝導体の抵抗変化として計測

## なぜ単一光子のエネルギーが測定できるのか

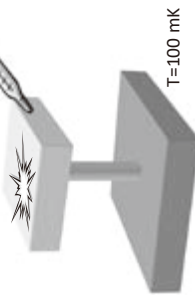
### Si-APDDの検出原理



電子正孔対の生成エネルギー  $E_g \sim 1.1$  eV  
～ 光子のエネルギー

- 光子1個 → (光) 電子1個  
※ 光子のエネルギー情報はここで失われる

### TESの検出原理



格子振動(フォノン)のエネルギー  $k_B T \sim 10 \mu\text{eV} \ll$  光子のエネルギー

- 光子1個 → フォノン  $10^6$  個  
※ 光子のエネルギー情報はフォノンの数に転写

## 単一光子分光検出装置全体

ファイバによるリンク



TESモジュール × 4連  
• TES素子 8個  
• 磁気シールド併用

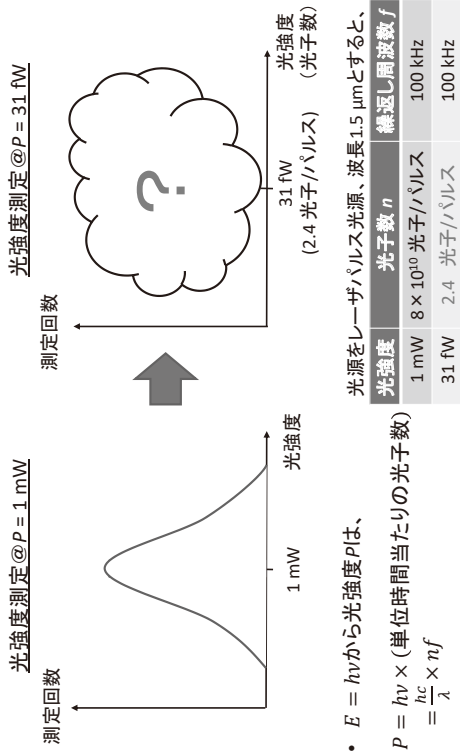


単一光子分光計測装置  
• 無冷媒断熱消磁冷凍機  
• SQUID制御装置  
• 波高分析器

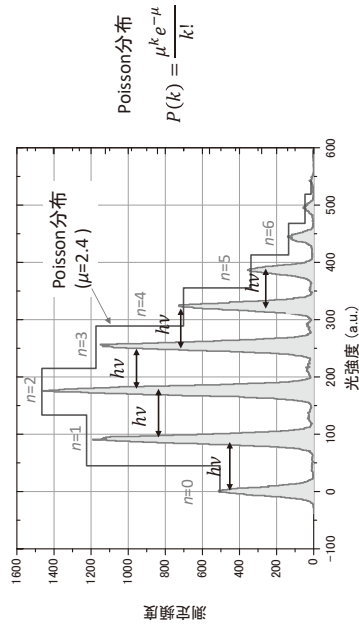


光子顕微鏡システム  
• 走査型光学顕微鏡  
• 共焦点蛍光顕微鏡

## 光子測定 of 不思議

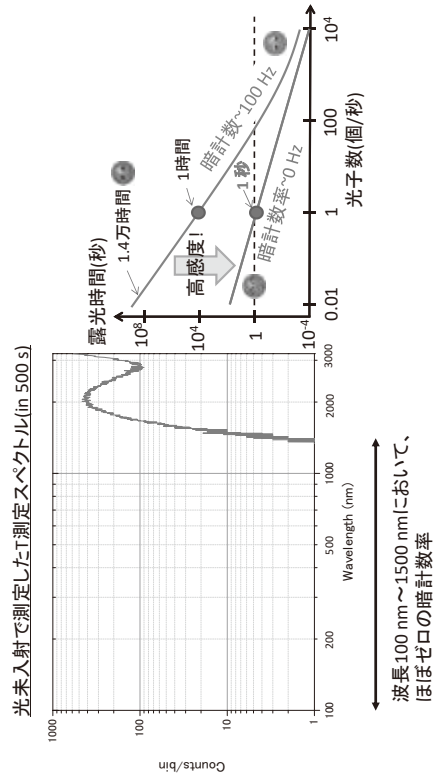


## 光子測定 of 不思議



- 微弱光計測では、光強度の測定結果は、光子1個のエネルギを単位として離散化。
- その光子数の揺らぎは、平均光子数  $\mu$  の Poisson 分布。

## 雑音 (暗計数) 特性



## 単一光子分光イメージングへの適用

- 広範囲の光子を測定可能
  - 可視域～近赤外～通信波長帯 ( $400 \text{ nm} < \lambda < 3 \mu\text{m}$ )
- 雑音 (暗計数) が皆無
  - 稀な現象を高感度に観察
  - 黒体放射 (Planck's law) の放射が見える!
- バイオイメージングへの適用 ← 光子顕微鏡!
  - 走査型光学顕微鏡
  - 共焦点蛍光顕微鏡

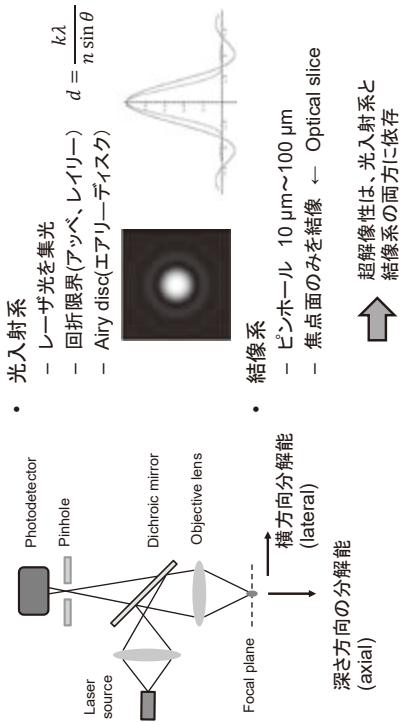




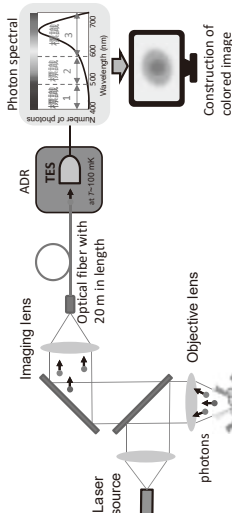
## 共焦点蛍光顕微鏡によるBI

- 細胞を染色し標識化し、レーザー照射（励起光）
- その蛍光を共焦点顕微鏡で観察
- 細胞の部位毎に異なる蛍光を持つ標識で染色
  - 核： DAPI
  - ミトコンドリア： Mito tracker
  - 細胞骨格： Alexa fluor
- ニーズ
  - 高分解能（超解像イメージング）
  - 多色で蛍光標識
  - 非侵襲観察

## 共焦点顕微鏡の光学系



## 共焦点蛍光顕微鏡 + TES



- 励起レーザー強度  
λ=488 nm, P=0.8 μW  
通常の共焦点顕微鏡の励起光強度は 10 uW~100 uW
- ピンホールサイズ~光ファイバ直径  
コア径9 μm ~ 0.5 AU < 1 AU  
通常の共焦点顕微鏡では、PH~1 AU(エアリーユニット)

## 共焦点蛍光顕微鏡 + TESによる結果

ウシ肺動脈内皮細胞のTESによる蛍光観察

D. Fukuda et al, "Confocal microscopy imaging with an optical transition edge sensor," published online on J. Low Temp. Phys., May 2018.

- 低いレーザー励起強度で高コントラスト画像
- 空間分解能 0.42 μm < 回折限界 0.54 μm

低い励起光強度観察は、細胞の非侵襲性担保に大きな利点

↑

ipS細胞を始めとした再生医療やヒト・動物の受精卵の観察など、細胞を傷つけずに観察には、大きな貢献が期待。

## 今後への展開

- 単一光子を分光可能な撮像素子→時間・空間分解能向上
  - TES検出素子の多素子化、超伝導共振器による読出回路
- 光検出の広帯域波長特性、低雑音性
  - 多色標識蛍光イメージング
  - 非染色自家蛍光イメージング
  - 活性酸素(一重項酸素)蛍光イメージング
  - 高波長分解能による高感度ラマン分光イメージング
- 産業応用
  - 半導体分野、材料分析分野で、非侵襲・低発生頻度の測定
  - 生体分子の探索を目的とした宇宙望遠鏡

Peter C. Nagler et al., "Development of transition edge sensor detectors optimized for single-photon spectroscopy in the optical and near-infrared," Proc. SPIE, 12 July, 2018.

www.aist.go.jp/RI/RESEARCH/INDUSTRIAL\_SCIENCE\_AND\_TECHNOLOGY/AIST/

## 分析計測標準研究部門の概要

計量標準総合センター 分析計測標準研究部門

野中 秀彦

国立研究開発法人 産業技術総合研究所(産総研)は、日本の産業を支える「エネルギー・環境」、「生命工学」、「情報・人間工学」、「材料・化学」、「エレクトロニクス・製造」、「地質調査」、「計量標準」という 7 つの領域の研究開発を行う、我が国最大級の公的研究機関です。「計量標準」は 5 つのユニットからなる計量標準総合センターを母体とし、その中の 1 ユニットである分析計測標準研究部門は、3 つの標準グループ(Standard Group)と 5 つの計測グループ(Measurement Group)が一体となって(表 1)、計量標準の開発・維持・供給と先端計測分析技術の活用により研究開発・製造の現場で生じる課題の解決を目指します。

より具体的には、標準グループは、医療用リニアックを用いた治療レベル線量標準、食品の放射能測定、環境騒音の低減に資する標準などに代表される、医療の信頼性、分析・検査産業の発展を支える放射線・放射能・中性子・音響・超音波に関連する国家計量標準の整備と普及を行います。一方、計測グループは、ナノ材料の評価等に必要な微細構造解析と製品や施設など構造物の非破壊検査のために、陽電子、X 線、レーザー光やイオン、超音波などをプローブとした先端計測、評価、分析および検査技術の研究開発を行います。当研究部門は分析・検査産業等を通じて、これらの分析と計測に関する標準と先端技術を普及し、より豊かで安全な社会の構築に貢献します。

なお、当研究部門のパンフレットには、各グループの概要、研究テーマ、産業界との連携、主な装置や計測技術、および研究部門としての活動内容が記載されていますので、そちらもご参照ください。

表 1. 分析計測標準研究部門に属する研究グループの一覧

研究グループ名	研究内容	主な応用分野
音響超音波標準研究グループ Acoustics and Ultrasonics S.G.	音響標準と超音波標準の研究開発と維持供給、関連する精密計測技術の研究開発。	音響機器、 医用超音波
放射線標準研究グループ Ionizing Radiation S.G.	放射線に関わる計量標準の開発・維持・供給および関連する計測技術の開発。	医療用放射線、 構造解析
放射能中性子標準研究グループ Radioactivity and Neutron S.G.	放射能および中性子に関わる計量標準の開発・維持・供給、および関連する計測技術の開発。	
X 線・陽電子計測研究グループ X-ray and Positron M.G.	X 線および陽電子をプローブとした計測技術の研究開発。	材料評価、 構造解析
ナノ顕微計測研究グループ Nanosopic M.G.	電子線やイオンビーム等をプローブとしたナノ領域の計測技術の研究開発。	
放射線イメージング計測研究グループ Radiation Imaging M.G.	放射線をプローブとした可視化計測技術の研究開発。	インフラ診断
非破壊計測研究グループ Non-destructive M.G.	超音波等を用いた画像解析による非破壊計測技術の研究開発。	ナノ材料評価、 環境測定
ナノ分光計測研究グループ Nanoscale Spectroscopic M.G.	レーザー光等を用いたナノ領域の分光計測技術の研究開発。	

JASIS2018コンファレンス  
産業技術総合研究所 計量標準総合センター  
分析計測標準研究部門 第4回シンポジウム  
「極限計測・分析が加速する研究開発イノベーション」

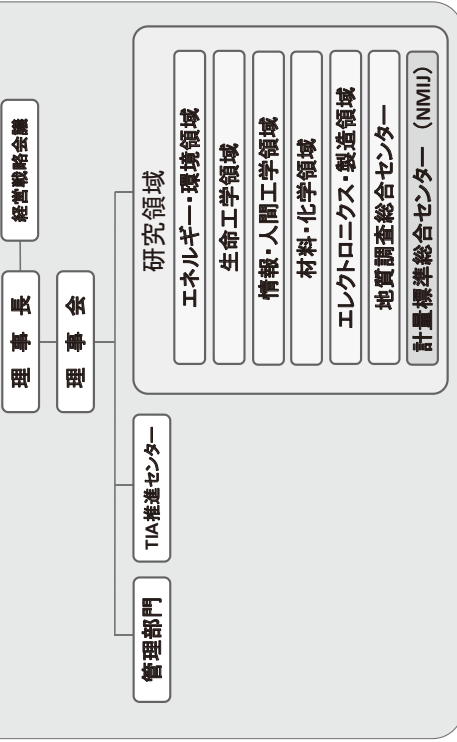
## 分析計測標準研究部門の紹介

研究部門長 野中 秀彦

hide.nonaka@aist.go.jp

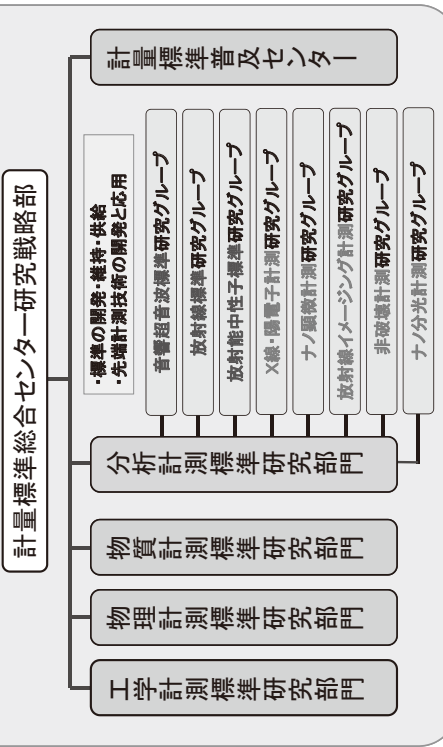
1

## 国立研究開発法人 産業技術総合研究所



2

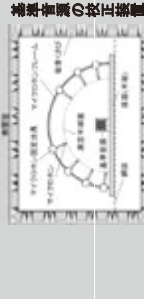
## 計量標準総合センター (NMIJ)



3

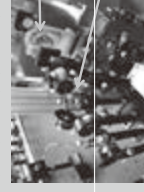
## 安全・安心な社会を実現する計量標準の開発と供給

### 音響超音波標準研究グループ



培養細胞の校正装置

環境騒音の精密計測の基準となる音響パワー標準  
医療用超音波機器の評価の基準となる音圧標準



高齢者の聴覚検査  
聴覚の聴測子  
計測する干渉計



医療用リニアックの線量の評価

環境放射線計測用機器の開発  
放射線防護の基準となる放射線量標準  
放射線治療機器の基準となる水吸収線量標準



放射性Csを含む  
玄米の認証標準物質

中性子サーベイメータの校正  
食品の放射能計測に役立つ認証標準物質  
原子力・医療用中性子の測定器の校正



放射能中性子標準研究グループ

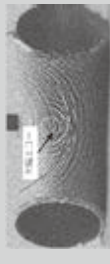
4



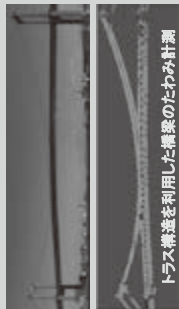
## 社会安全・安心に向けた先端計測技術の開発

- レーザー超音波を利用した可視化探傷技術の開発
- モアレ縞を利用した変位ひずみ分布計測法の開発

### 非破壊計測研究グループ



超音波の可視化による探傷



トラス線差を利用した線差のたわみ計測



可搬型X線源

- 超小型X線源によるその場非破壊検査
- 電池寿命1年の個人向け放射線量計の開発

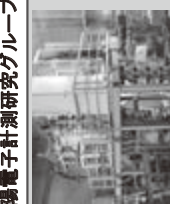
### X線・陽電子計測研究グループ



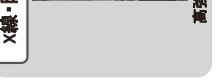
後方散乱X線を用いた構造物の検査

- 可搬型電子加速器を使ったインフラ診断
- 非破壊イメージング技術

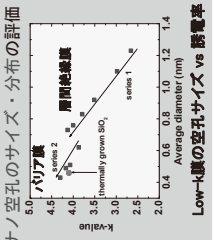
### 放射線イメージング計測研究グループ



X線・陽電子計測研究グループ



高強度短パルス陽電子ビームライン



瞳孔カメラ  
カラー化技術

フォト秒速感取  
分光システム

- 過速吸光分光法による新材料の機能発現機構の解明
- 光の反射・干渉の高度制御技術の開発

### ナノ分光計測研究グループ



質量分析による構造解析

- ナノ材料のイメージング・微量検出技術の開発
- ナノ材料計測の国際標準化の推進

### ナノ顕微鏡計測研究グループ



ナノスケール標準試料

- ナノ材料のイメージング・微量検出技術の開発
- ナノ材料計測の国際標準化の推進

### ナノ顕微鏡計測研究グループ

## 独自開発の最先端・革新的計測機器・手法の利用公開

- つくばイノベーションリーナノテクノロジー拠点(TIA-nano)
- ・先端機器共用イノベーションプラットフォーム(BEC)
- ・文部科学省事業ナノテクノロジープラットフォーム
- ・微細構造解析プラットフォーム

ANCFで検索

超伝導分析機器

放射光線大まか測定装置 (放射線)

質量分析(分子)

ナノ表面分析機器

音場プローブ測定機

陽電子付着電子分光 (PES)

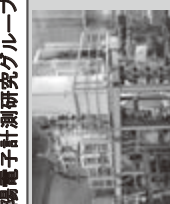
陽電子欠陥測定(ナノ空洞)

超伝導共振(MNMR)(固体核磁気共鳴)

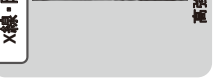
レーザー照射・近赤外線吸収分光(VITA) (陽子・電子状態)

高強度陽電子ビーム計測装置 陽電子成分分析装置

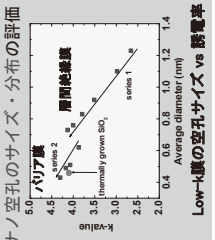
## 新材料開発を支える計測・評価技術の開発



X線・陽電子計測研究グループ



高強度短パルス陽電子ビームライン



瞳孔カメラ  
カラー化技術

フォト秒速感取  
分光システム

- 過速吸光分光法による新材料の機能発現機構の解明
- 光の反射・干渉の高度制御技術の開発

### ナノ分光計測研究グループ



質量分析による構造解析

- ナノ材料のイメージング・微量検出技術の開発
- ナノ材料計測の国際標準化の推進

### ナノ顕微鏡計測研究グループ



ナノスケール標準試料

- ナノ材料のイメージング・微量検出技術の開発
- ナノ材料計測の国際標準化の推進

### ナノ顕微鏡計測研究グループ

## NMIJ計測クラブ

技術分野や技術テーマごとに以下の活動を実施(会員登録制)

- ・研究会、講演会の開催。技術相談、共同研究。
- ・経済産業省の計量標準施策、国際計量業務活動の報告・解説。
- ・標準量目の整備や標準供給の準備状況、将来に向けた物理量・化学物質の標準予測の意見交換の場。
- ・現在20以上のクラブが活動中(NMIJホームページで公開中)

- ・超音波音場計測クラブ：数十kHz～数十MHz帯の水中超音波の音圧、パワー、インテンシティ、音場プロファイル、キャビテーション発生量等の精密計測技術や不確かさ評価方法、超音波計測に関連する規格の現状。
- ・放射線・放射能・中性子クラブ：放射線、放射能、中性子関連量に関する標準開発や計測技術開発への要望、JCSS・JIS・ISO・IECに対する要望。
- ・量子ビーム計測クラブ：中性子、X線・ガンマ線、陽電子線などの先端的な量子ビーム源、それらを用いた材料分析および非破壊計測、並びに製品評価技術。

## 「極限計測・分析が加速する研究開発イノベーション」

【依頼講演 I】 パワーレーザーと X 線自由電子レーザーを用いた極限環境下の物質ダイナミクス観察  
尾崎 典雅 様 (大阪大学大学院工学研究科准教授)

## 【成果発表】

- ① 「先端研究を支える超強度 X 線ハルズレーザのパワー測定」  
(放射線標準 田中 隆宏)
- ② 「陽電子を用いる超微細欠陥の評価技術」  
(X 線・陽電子計測 オローク ブライアン)

【依頼講演 II】 単一光子レベルの極微弱光を観測する  
「光子顕微鏡」の開発  
福田 大治  
(物理計測標準研究部門 量子光計測研究グループ長)

## 【成果発表】

- ① 「超微細表面物性の定量計測」 (ナノ顕微計測 井藤 浩志)
- ② 「超高温域の炭素系材料の物性計測とその結果の分析」  
(非破壊計測 岩下 哲雄)

9

## 産総研 分析計測標準研究部門



\*本セッションで講演

10

ご清聴ありがとうございました。

11

# 先端研究を支える超高強度 X 線パルスレーザーのパワー測定

放射線標準研究グループ 田中 隆宏

## 要旨

X 線波長領域のレーザーである X 線自由電子レーザーが近年実用化された。この新しい X 線光源は、既存の高輝度光源である第三世代の放射計をはるかに凌ぐ強度を有し、フォトダイオードなどの既存の光強度測定器では測定が難しい。そこで、X 線自由電子レーザー用の常温放射計を開発し、X 線自由電子レーザーの絶対強度ならびにビームラインに常設の実用検出器の校正を行った。実用検出器を校正により、X 線自由電子レーザーを利用した先端研究に対して、信頼性のある強度（レーザーパワー）の絶対値を提供している。

## 1. はじめに

近年、自己増幅自発放射に基づいた X 線自由電子レーザー（ここでは単に X-ray free-electron laser: XFEL とする）が、X 線波長領域の新しい光源として実用化された。XFEL の発振は 2009 年のアメリカ（LCLS/SLAC）から始まり、現在では日本（SACLA<sup>1</sup>）、韓国（PAL-XFEL）、スイス（Swiss-FEL）、EU（European XFEL、所在地はドイツ）においても XFEL を利用した研究が精力的に進められている。

XFEL 施設は、主に低エミッタンス電子銃、直線加速器、アンジュレータ（電子ビームを蛇行させる磁石列）で構成され、その全長は数百 m から数 km と、可視光領域のレーザーとは異なる規模を有する。XFEL には、フェムト秒オーダーの短いパルス幅、ギガワットに達する高いピーク強度、高い空間コヒーレンス、といった従来の X 線源には無い特徴がある。この XFEL のパルス幅やピーク強度について SACLA の XFEL を例に挙げると、国内最大の第三世代の放射光施設である SPring-8 と比べても、パルス幅は 1/1000 以下、ピーク強度は SPring-8 の 10 億倍以上となる（例えば、パルスエネルギー：0.5 mJ、パルス幅：10 fs とすると、ピークパワーは 50 GW となる。また、パルスの繰返しを 60 Hz とすると、平均レーザーパワーは 30 mW となる）。このように非常に強力なパルス光源である XFEL は、放射光施設などで利用されているフォトダイオードなどの既存の光強度測定器を飽和もしくは損傷させるため、XFEL に特化した測定技術の開発が求められる。さらに、XFEL にはパルス毎の強度変動（標準偏差：20%程度）が発生メカニズム上避けられない、という特性がある。そのため、XFEL の絶対強度は、光源性能を表す単なる物理量だけではなく、XFEL 利用実験を支えるという重要な役割を担っている。さらに、XFEL の光源性能の向上や、光学素子材料の評価においても XFEL の絶対強度は欠かせない基本量のひとつである。

このような背景のもと、当研究グループは、極低温放射計を国家標準器とした放射光軟 X 線フルエンス標準の技術基盤を活かし、XFEL の絶対強度の測定が可能な極低温放射計を開発した。SACLA において、この極低温放射計を用いた XFEL の絶対強度測定を世界



で最初に成功し、放射計による XFEL の絶対強度測定の有用性を証明した<sup>2</sup>。しかし、極低温放射計は nW(ナノワット)オーダーの微弱なパワーに感度がある高精度な絶対測定器である反面、液体ヘリウムによる冷却が必要となるため、①装置の大型化、②取り扱いの煩雑性、③冷媒のランニングコスト、④冷却準備期間 (3~4 日)、⑤感度の入力電力依存性などの課題がある。最大の欠点は、極低温放射計内部に超電導ワイヤー (NbTi) を用いているため、受光部の温度が転移温度 (約 9 K) を超えるような高いパワー (筆者らの極低温放射計では約 4 mW 以上) を計測できないことである。そのため、極低温放射計は SACLA の最大パワー (数十 mW) までカバーできない。そこで、極低温放射計の操作性の向上とダイナミックレンジの拡張を目指し、新たに常温放射計<sup>3</sup>を開発した。本稿では、常温放射計の概要ならびに常温放射計による XFEL の絶対強度測定の結果を述べる。

## 2. 常温放射計

放射計は、吸収体 (受光部) で生じる微小な温度変化の測定を基礎とした熱量計である。図 1 に常温放射計の全体ならびに受光部の概略図を示す。受光部は厚さ 1 mm の金の板と銅製の筒で構成されている。受光部に入射した XFEL ビームの大半は金の板で吸収されるが、金の板からの散乱線や蛍光などを銅製の筒で再吸収することにより、光子エネルギーが 1 keV~60 keV の範囲で 99.7 %以上の高い吸収率の受光部となっている。したがって、受光部で吸収された XFEL は受光部の温度変化として観測されることになる。

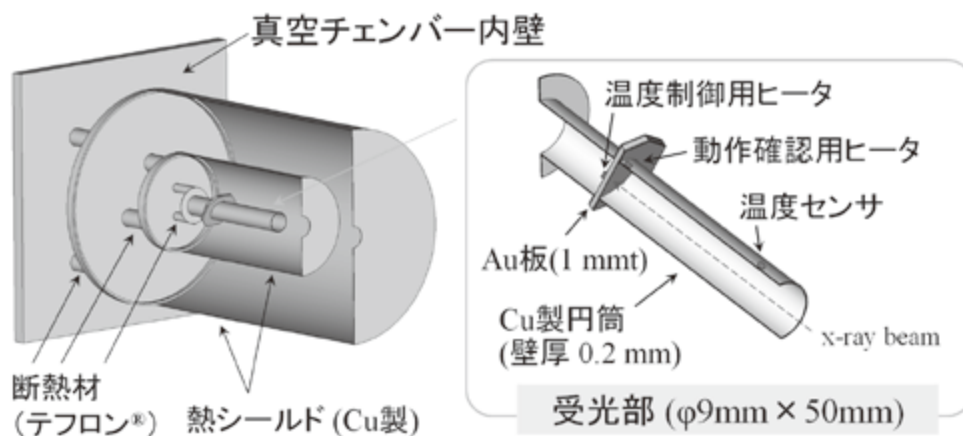


図 1. 常温放射計の全体 (左) および受光部 (右) の概略図

XFEL のパワーを正確に測定するためには、受光部の温度安定性が重要となる。そのため、受光部の周囲は二重の熱シールドで囲われている。受光部と二重の熱シールドのそれぞれに温度センサー (NTC サーミスタ) とヒータ (チップ抵抗) が取り付けられており、各部の温度が一定になるように、各ヒータ出力を PID 制御している。常温放射計では、受光部の温度が XFEL の有無に関わらず常に一定となるように受光部のヒータ出力を制御している。この時、外部から XFEL が受光部に入射すると、XFEL のパワーの分だけ受光部ヒータ出力は低下する。つまり、常温放射計では、XFEL のパワーを、受光部ヒータ出力の低下として即時的に計測することが可能となる。常温カロリメータは、X 線領域のシ

シンクロトロン放射光を用いて極低温放射計との比較により、十分な同等性が確認されている（不確かさ1%の範囲内での一致）。

### 3. 常温放射計によるXFELのレーザーパワーの絶対測定

この常温放射計を使い、SACLAのビームラインに常設の強度モニタ（実用測定器）<sup>4</sup>の校正し、XFELでの常温放射計の有用性を検証した。図2に強度モニタの感度（校正定数の逆数）の光子エネルギー依存性を示す<sup>5</sup>。極低温放射計では、光子エネルギー4点での校正に約5日間（冷却時間含む）を要したが、常温放射計では図2に示した全て光子エネルギー点での校正を1日で行った。また、常温放射計による校正結果は、極低温放射計の校正結果は良い一致を示したのと同時に、常温放射計による光子エネルギーの対する詳細な校正によって強度モニタの感度のエネルギー依存性が明らかとなった。この詳細な校正結果により、XFEL利用実験のユーザーに正確な絶対強度を提供することが可能となった。

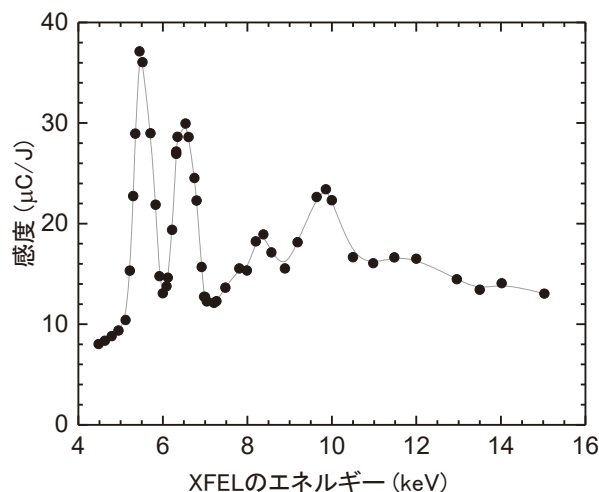


図2. SACLAの強度モニタの感度の光子エネルギー依存性

### 4. まとめ

常温放射計の開発により、SACLAのXFELの出力（レーザーパワー）の絶対測定が可能となった。これにより、XFELを利用した先端研究に対して、信頼性のあるレーザーパワーの絶対値を提供できるようになった。

極低温放射計や常温放射計などの既存の放射計は幾何学的な寸法が大きいため、スペースの限られたXFEL施設では汎用性に欠ける。そこで、ビームラインへの出し入れが可能な小型の常温放射計を開発し、絶対強度の測定のみならずFELビームラインの透過率の測定など、新しい活用も進めている<sup>6</sup>。XFEL光源は新しい光源であるため、光源性能の向上が著しく、絶対計測に代表されるビーム診断技術の革新のスピードも速い。今後もXFEL光源の性能向上に遅れをとらないように絶対測定技術を開発し、先端研究に対して信頼性のある良質な実験環境を提供していただけるように研究開発を進めてく予定である。

## 謝辞

ここに紹介した研究は、筆者が所属する産業技術総合研究所分析計測標準研究部門の放射線標準研究グループの齋藤則生研究副研究部門長および加藤昌弘主任研究員、理化学研究所放射光科学研究センターXFEL 研究開発部門ビームライン研究開発グループ 矢橋牧名グループディレクター及び高輝度光科学研究センターXFEL 研究推進室利用技術開発・整備チーム 登野健介チームリーダーのグループとの共同研究の成果である。また、本研究の一部は、文部科学省の科学技術試験研究委託事業「X線自由電子レーザー利用推進研究課題（平成21年度—22年度）」、および理化学研究所「SACLA 利用装置提案課題（平成23年度）」ならびに JSPS 科研費 26600149 の支援を受けて行った。

<sup>1</sup> T. Ishikawa *et al*, Nat. Photonics **6** 540 (2012).

<sup>2</sup> M. Kato *et al*, Appl. Phys. Lett. **101** 023503 (2012).

<sup>3</sup> T. Tanaka *et al*, Rev. Sci. Instrum. **86** 093104 (2015).

<sup>4</sup> K. Tono *et al*, Rev. Sci. Instrum. **82** 023108 (2011).

<sup>5</sup> T. Tanaka *et al*, Metrologia **53** 98 (2016).

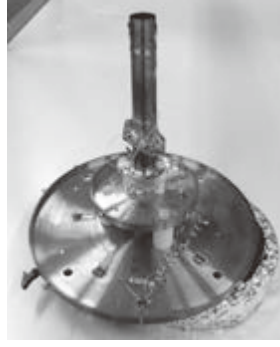
<sup>6</sup> T. Tanaka *et al*, Opt. Lett. **42** 4776 (2017).

# 先端研究を支える超高強度X線パルス レーザーのパワー測定

産業技術総合研究所 計量標準総合センター  
分析計測標準研究部門  
田中 隆宏

Sep. 7, 2018 @JASIS2018

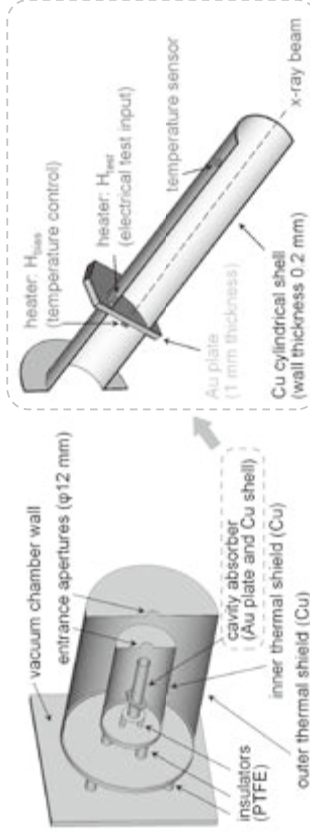
## 常温放射計の外観および本体



## 常温放射計



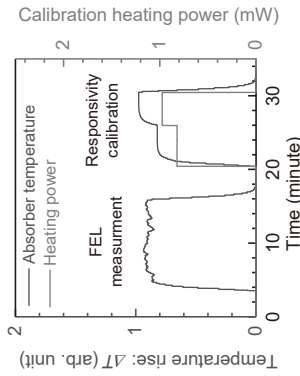
## 常温放射計の模式図(全体および受光部)



・齋藤 剛生、田中 隆宏 他「絶対光強度測定装置及び測定方法」特許第6213986号  
・T. Tanaka *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **86** (2015) 083104

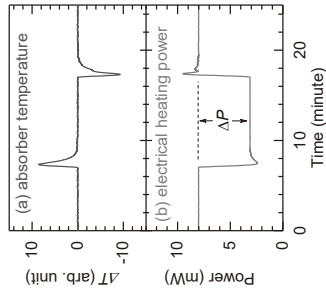
## 放射計の運転モード

### Passive mode (open loop)



$$P_{\text{laser}} = \frac{\Delta T}{S}$$

### Active mode (closed loop)

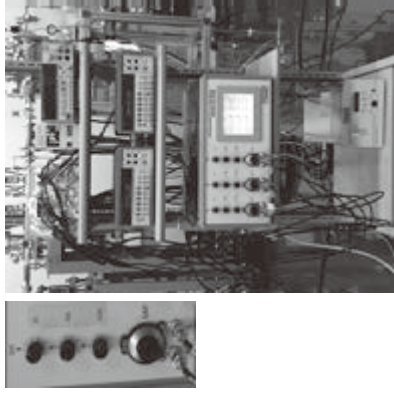
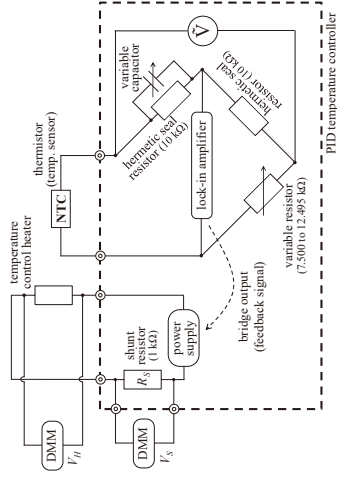


$$P_{\text{laser}} = \Delta P = P_{\text{Off}} - P_{\text{On}}$$

## 制御・計測系

### 温度測定(抵抗測定)

### 交流ブリッジ+ロックインアンプ

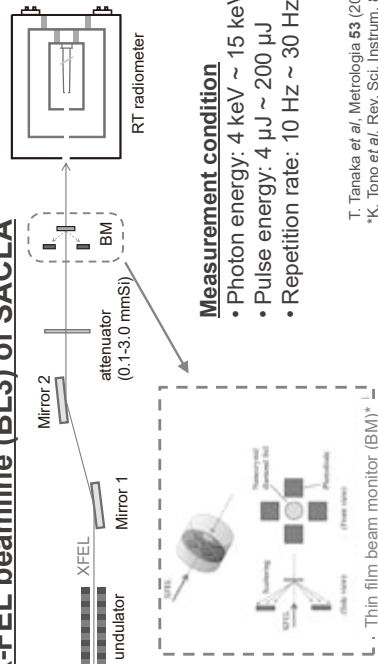


AIST

MINORAKI et al. SCIENTIFIC METROLOGICAL SCIENCE AND TECHNOLOGY (AIST)

## 常温放射計によるXFELのパワー測定(@SACLA)

### Hard X-FEL beamline (BL3) of SACLA



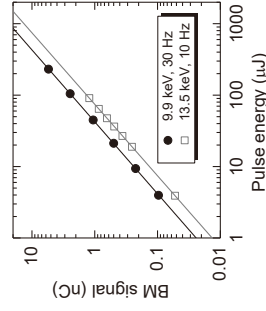
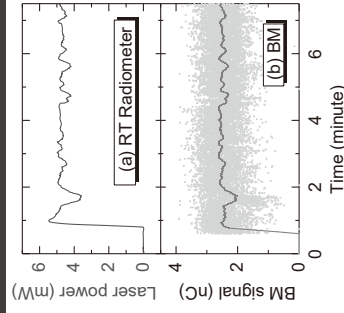
### Measurement condition

- Photon energy: 4 keV ~ 15 keV
- Pulse energy: 4 μJ ~ 200 μJ
- Repetition rate: 10 Hz ~ 30 Hz

T. Tanaka *et al.*, Metrologia **53** (2016) 98-102  
\*K. Tono *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **82** (2011) 023108

MINORAKI et al. SCIENTIFIC METROLOGICAL SCIENCE AND TECHNOLOGY (AIST)

## 常温放射計によるXFELの絶対パワー測定



Correlation between RTR and BM

- 常温放射計の測定数: ~10s
- 常設モニターと良い線形性

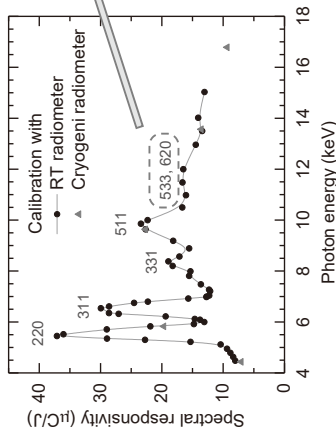
SACLAのレーザーパワーの測定  
(上)常温放射計(下)ビームライン常設のモニター  
(赤線はハルスエネルギー信号の10秒間の移動平均)

T. Tanaka *et al.*, Metrologia **53** (2016) 98

MINORAKI et al. SCIENTIFIC METROLOGICAL SCIENCE AND TECHNOLOGY (AIST)

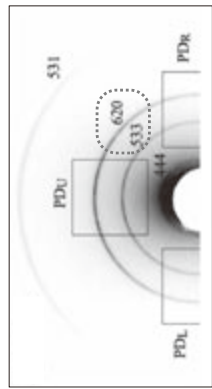


## SACLAビームラインモニターの校正 (常温放射計)



Calibration results of thin-film BM  
(blue character: Miller indices)

セットアップ期間を含め2日間で校正



Diffraction patterns from thin film of BM\*  
(wavelength: 0.1 nm)

T. Tanaka *et al.*, *Metrologia* **53** (2016) 98-102  
\*K. Tono *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **82** (2011) 023108

INTERNATIONAL SCIENCE AND TECHNOLOGY CENTER

## 常温放射計の不確かさの内訳

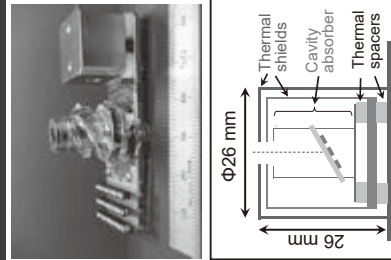
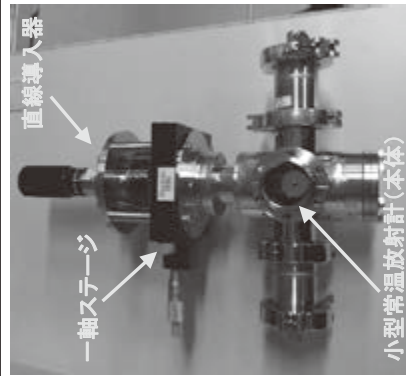
Source of uncertainty	Relative standard uncertainty (%)		
	0.1 mW	0.2 mW	1 mW 5 mW
Cavity absorptance		0.15	
Electrical power measurement		0.01	
Heating in lead wires		0.12	
Nonequivalence of electrical and radiant heating		0.58	
Stability of bias power	0.70	0.35	0.10 0.05
Statistic of $\Delta P$ measurement (A-type)	0.49	0.22	0.10 0.05
Combined standard uncertainty ( $k=1$ )	1.0	0.73	0.62 0.61

受光部内の温度分布の影響  
(常温では、受光部の熱伝導率が極低温と比べて10分の1)

T. Tanaka *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **86** (2015) 093104

INTERNATIONAL SCIENCE AND TECHNOLOGY CENTER

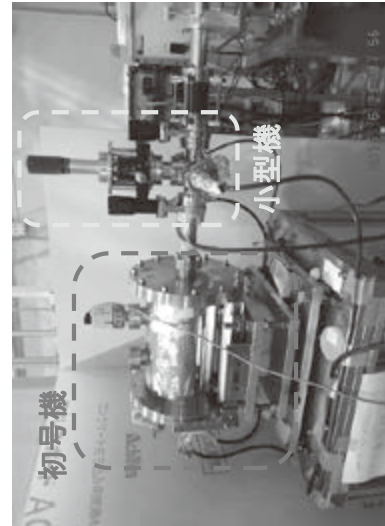
## 小型常温放射計(プロトタイプ)



T. Tanaka *et al.*, *Opt. Lett.* **42** (2017) 4776

INTERNATIONAL SCIENCE AND TECHNOLOGY CENTER

## 小型常温放射計



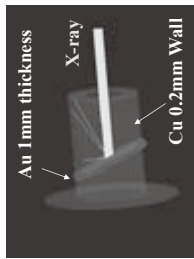
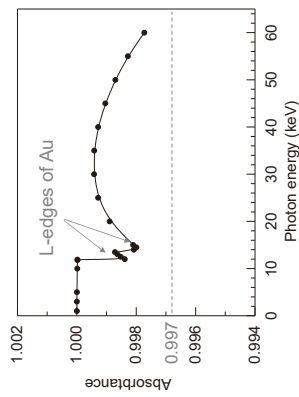
初号機の約1/30の大きさ



INTERNATIONAL SCIENCE AND TECHNOLOGY CENTER

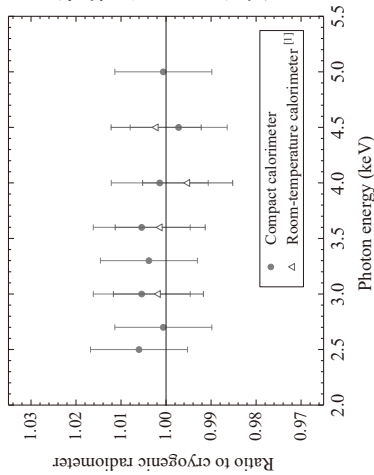
## 小型常温放射計の受光部の吸収率

Simulation code: Monte Carlo simulation (EGS5)



Absorbance is more than 99.7% from 1keV to 60keV.

## 小型常温放射計の評価(@BL11B-PF)

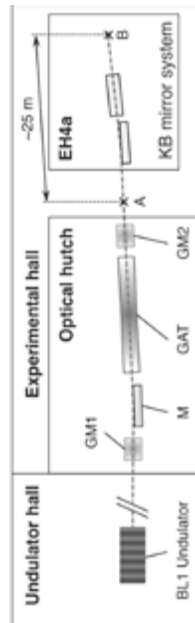


極低温放射計と常温放射計の両方で校正されたフォトダイオードを使って、小型常温放射計の性能を評価

不確かさ(~1%)の範囲内で、3種の放射計の同等性を確認

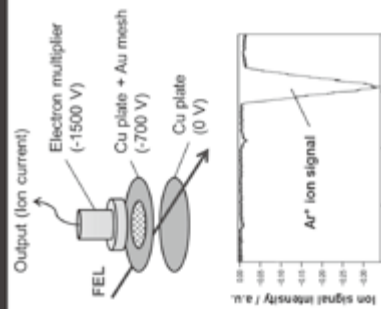
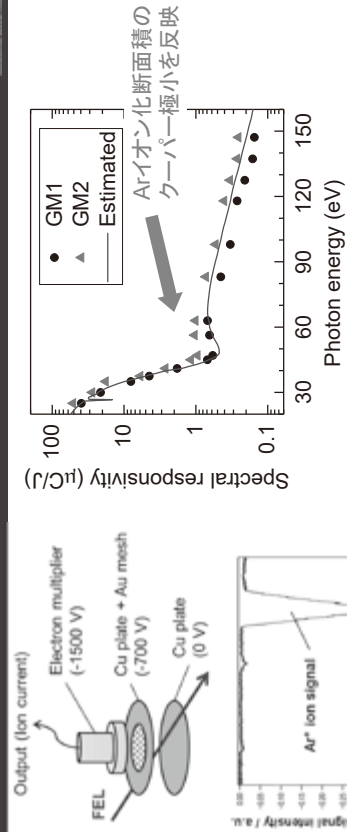
## 小型常温放射計によるFEL測定(@SACLA BL1)

- NEW EUV-FEL beamline (BL1\*) @ SACLA
- 20 eV ~ 150 eV (30 Hz and 60 Hz)
- calibration of online intensity monitors (gas monitors)
- evaluation of beamline transmission (throughput of a K-B optics)



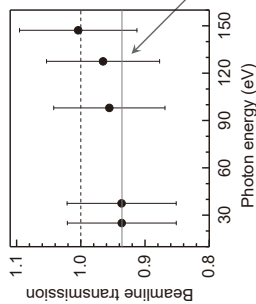
\*S. Owada et al., J. Synchrotron Radiat. **25** (2018) 282.

## EUV-FEL(SACLA BL1)のビームモニター校正



T. Tanaka et al., Nucl. Instrum. Methods A, **894** (2018) 107  
 T. Tanaka et al., Opt. Lett. **42** (2017) 4776  
 \* K. Tiedtke et al., J. Appl. Phys. **103** (2008) 094511

# ビームラインの透過率の測定(EUV-FEL @SACLA)



**Beamline transmission**  
 Reflectivity two mirrors of KB system  
**Mirrors of KB system**  
 - Silicon substrate with carbon coating  
 - Incidence angle: 1.5 degrees  
 - Focus size: below 10µm  
 Reflectivity: ~97% (in 20 eV ~ 150 eV)

Agreed well with estimated transmission (red line)

T. Tanaka *et al.*, Opt. Lett. **42** (2017), 4776-4779

www.aist.go.jp/SCIENCE/RESEARCH/SCIENCE\_AND\_TECHNOLOGY/AIIST/

# 謝辞



**AIIST** : M. Kato, T. Kurosawa and N. Saito

: K. Tono, S. Owada, M. Yabashi, and T. Ishikawa

**PF** : A. Gottwald, F. Scholze, U. Kroth, R. Klein, R. Thormagel, and M. Richter

: A. A. Sorokin, S. Klumpp, U. Jastrow and K. Tiedtke

: A. Galler, D. Khakhulin, J. Grünert and C. Bressler

**LSL** : A. Robert, S. Song, M. Sikorski, R. Alonso-Mori, S. Moeller, and M. Hunter

本研究の一部は、理化学研究所「SACLA利用装置提案課題（平成23年度）」ならびに、JSPS科研費26600149の助成を受けたものです。また、SPRING-8での実験は課題番号2009B1190、2010B1304、PFでの実験は課題番号2008G009、2015G066のもとでそれぞれ行われました。ここに感謝の意を表します。

www.aist.go.jp/SCIENCE/RESEARCH/SCIENCE\_AND\_TECHNOLOGY/AIIST/



# 陽電子を用いる超微細欠陥の評価技術

X線・陽電子計測研究グループ オローク ブライアン、満汐 孝治、大平 俊行  
小林 慶規、鈴木 良一、大島 永康

## 要旨

当研究グループでは、電子線形加速器を用いた高強度パルス状陽電子ビーム発生  
の技術と、それを利用した空隙分析・評価に資する陽電子寿命測定法の開発に取り  
組んできた。また、局所的な空隙構造をマッピング可能な陽電子マイクロプロ  
ーブアナライザー(PPMA) や、大気圧・湿潤制御下で動作可能な PPMA の開発も  
進めてきた。陽電子寿命計測装置の一部は、産総研先端ナノ計測施設 (ANCF)  
や「ナノテクノロジープラットフォーム事業」において外部に公開されており、  
共用設備として利用可能である。本報告では、低速陽電子ビーム施設の応用研究  
例を紹介する。

## 1. はじめに

構造材料や特性機能性材料の機械的、電気的特性やガス透過特性等の様々なマクロ特性  
は構成する元素だけでなく原子サイズの空孔型欠陥 (原子空孔・マイクロボイド) や分子  
間空隙 (自由体積空孔) にも大きく影響される。特に金属, 半導体, 高分子などを複合的  
に用いる先端材料・高機能材料分野では表面近傍・局所領域中の原子空孔や分子間空隙の  
精密解析が重要である。電子の反粒子である陽電子は、原子空孔や分子間空隙の高感度プ  
ローブとして知られている。陽電子が試料に入射してから電子と対消滅するまでの時間  
(陽電子寿命) を測定することで、試料中の空孔型欠陥や分子間空隙を評価できる<sup>1</sup>。

## 2. 開発装置の概要

当研究グループでは電子加速器ベースの高強度低速陽電子ビーム利用施設を構築して  
きた。電子加速器の電子ビーム (電子ビームエネルギー: ~40 MeV、ビームパワー: 数  
100 W) をターゲット (タンタル製、厚み 5 mm) に入射すると、高エネルギー電子、陽電  
子、X 線、中性子等のシャワーが放出される。真空側に設置した減速材 (タングステン、  
厚さ 50 ミクロンを井形に組んだもの) を通して陽電子を減速し、低速陽電子ビーム (運  
動エネルギー~10 eV) を形成する。発生部から測定部までソレノイドコイルに囲まれて設  
置されているビームラインを通して低速陽電子ビームを磁気輸送する。施設の詳細は本報  
告集を参考にさせていただきたい<sup>2</sup>。

測定室側にビームを垂直方向に入射できるポートが 2 本あり、第 1 のポートにはビーム  
短パルス化後に陽電子寿命測定(Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy: PALS)を、第 2  
のポートにはビーム集束 (高輝度化) および短パルス化後に陽電子寿命測定を行う陽電子  
プローブマイクロアナライザー(Positron Probe MicroAnalyzer: PPMA)<sup>3</sup> と呼ばれている装置  
がそれぞれ設置されている<sup>4</sup>。両装置とも入射エネルギーを調整することで (可変範囲: 1

–30 keV)、陽電子の打ち込む深さを制御できる(平均深さで数 nm から数  $\mu\text{m}$  まで)。PPMA 装置では、ビーム径が小さい(最小約 50  $\mu\text{m}$  まで収束することが可能)ため、試料の局所的な欠陥分布測定(欠陥イメージング)等のユニークな測定が可能である。集束した陽電子ビームを微小真空窓から大気中へ取り出すことによって、環境に特性が影響される薄膜材料の“その場”評価法も開発されている<sup>5</sup>。

### 3. 装置の応用例

PPMA 装置の特徴を生かして、イメージング測定と実環境測定の実用例を紹介する。

#### 3.1 イメージングの実用例<sup>6</sup>:

高張力マルテンサイト鋼の水素脆化における欠陥研究に PPMA を適用し、試料の異なる部位の陽電子寿命を測定した。以下の試料について測定を行った。1: 未処理試料 2: 水素チャージをせず、抗張力の 70 % まで延伸した試料 3: 50 °C の温度に保った 20 % (質量)  $\text{NH}_4\text{SCN}$  溶液中で水素チャージを行ったのち、抗張力の 70 % まで延伸した試料。試料 3 は、水素脆化による材料強度の低下の結果、上記の応力下での延伸によって破断した。ラインスキャンで得られた陽電子寿命を図 1 に示した。未処理試料および水素処理を行わなかった試料では、陽電子寿命は部位によらずほぼ一定であるが、破断した試料においては、明らかにスキャンしたすべての部位で陽電子寿命が長くなっている。この試料の破断部付近では、陽電子寿命が特に長くなっており、大きな原子空孔クラスターが蓄積していることを示している。

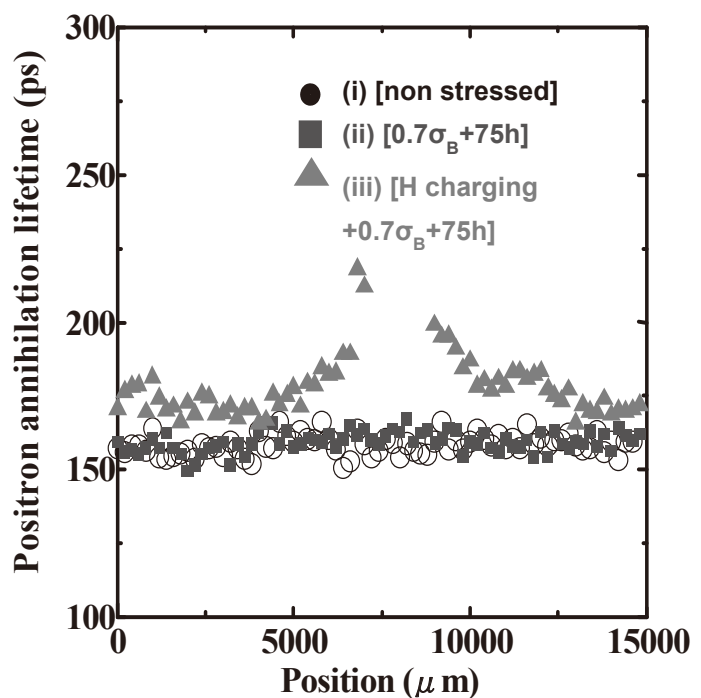


図 1. 3 種類の高張力鋼試料で得られた陽電子寿命のラインスキャン。試料に対して行った処理は本文参照。試料 3 における陽電子寿命の大きな増加は、水素脆化によって生じた欠陥の影響を示している<sup>6</sup>。

#### 3.2 実環境測定の実用例<sup>7</sup>:

集束した陽電子マイクロビームを薄い真空窓の中心に照射することで、陽電子ビームを真空中から大気環境中に取り出すことができる。実験セットアップを図 2 に示した。厚さ 30 nm の SiN 真空窓とエネルギー 5 keV の陽電子ビームを用いることにより、多くの陽電子を真空窓中で消滅させることなく、窓で仕切られた大気環境中に入射させることができ

る。マイクロポーラスシリカ薄膜試料中の空孔のサイズへの湿度の影響を調べるため、特別仕様のチャンバー内の真空窓近傍（距離は数 10 マイクロメートル）に薄膜試料を設置した。チャンバー内は、湿度を制御した窒素ガスを流すことによって、異なる湿度に維持することができる。120 °Cおよび 200 °Cでアニールしたプラズマ CVD 膜（それぞれ膜 1 および膜 2）についての測定で得られた陽電子（厳密には、陽電子と電子が結合した状態であるポジトロニウム）の寿命を湿度の関数として、図 3 に示した。ポジトロニウム寿命は、半径験的な Tao-Eldrup モデル<sup>9</sup>によって、空孔サイズと関係づけられる。これらの CVD 膜では、 $\tau_3$ 、 $\tau_4$ で示されるポジトロニウム寿命が観測され、2 種類の空孔が存在し、どちらの空孔のサイズも湿度に強く依存することわかった<sup>7</sup>。

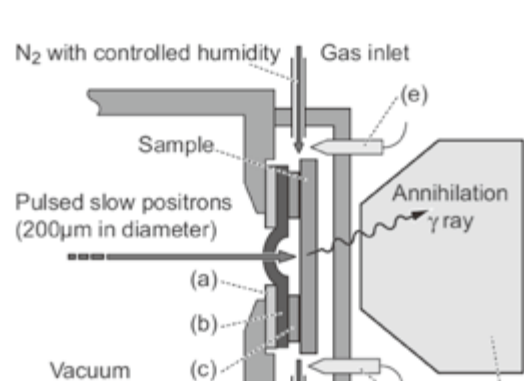


図 2. PPMA を用いた大気環境陽電子寿命 セットアップ<sup>8</sup>

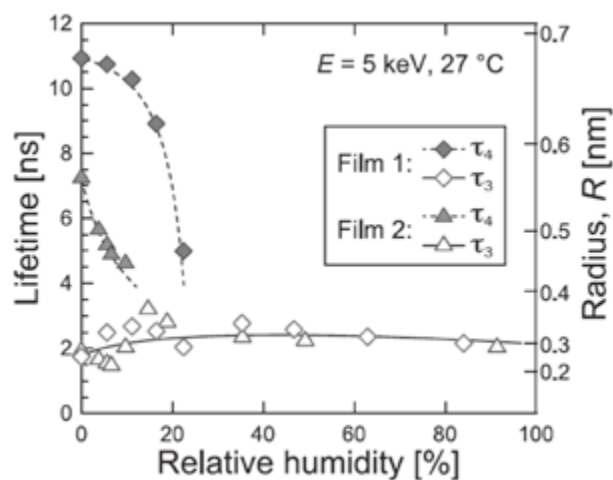


図 3. アニールしたシリカ薄膜試料のポジトロニウム寿命の相対湿度依存性<sup>7</sup>

#### 4. まとめ

産業技術総合研究所では、エネルギー可変パルス低速陽電子ビームを用いて、陽電子寿命測定を行っている。この方法により、金属および半導体の表面付近の欠陥や高分子薄膜の自由体積の分析が可能である。陽電子ビームを集束してマイクロビーム（直径 ~ 50 μm）にすることにより、欠陥分布のマッピング（1-D ラインスキャン、2-D イメージングなど）や陽電子マイクロビームをサイズの小さい薄い窓を通して入射させ、大気条件下で陽電子寿命測定を行うことも可能である。本実験施設は、ナノテクノロジープラットフォーム事業により外部利用者に公開されている<sup>10</sup>。測定時間を短縮し、分析のスループットを改善するため、陽電子の生成効率やビームの輸送効率の向上に取り組んでいる。高強度陽電子ビームは、同時計測やさらなるビーム集束が必要な新規分析法の開発・適用にも必要である。

<sup>1</sup>産総研 Today Vol. 14-9 (2014).

<sup>2</sup>満汐、オローク、小林、鈴木、大島、本要項集 (2018).

- <sup>3</sup> N. Oshima *et al.*, *Rad. Phys. Chem.* **78**, 1096 (2009).
- <sup>4</sup> B. E. O'Rourke *et al.*, *JJAP Conf. Proc.* **2**, 011304 (2014).
- <sup>5</sup> N. Oshima *et al.*, *Appl. Phys. Exp.* **4**, 066701 (2011).
- <sup>6</sup> T. Doshida *et al.*, *ISIJ International* **52**, 198 (2012).
- <sup>7</sup> K. Ito *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 083701 (2018).
- <sup>8</sup> W. Zhou *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 014102 (2012).
- <sup>9</sup> M. Eldrup *et al.*, *Chem. Phys.* **63**, 51 (1981).
- <sup>10</sup> <http://unit.aist.go.jp/rima/nanotech>

# 陽電子を用いる超微細欠陥の評価技術

Characterization of nano-scale defects using positrons

オロークブライアン, 満汐 孝治, 大平 俊行,

小林 慶規, 鈴木 良一, 大島 永康

産業技術総合研究所 分析計測標準研究部門

X線・陽電子計測研究グループ

第4回 部門シンポジウム @ JASIS2018  
2018年09月07日

# 目次

- 陽電子について
- 世界最先端低速陽電子施設の紹介
- 測定例
- (陽電子の)まとめ
- 陽電子以外の量子ビーム技術

# 目次

- 陽電子について
- 世界最先端低速陽電子施設の紹介
- 測定例
- (陽電子の)まとめ
- 陽電子以外の量子ビーム技術

# 電子の反粒子：陽電子(e<sup>+</sup>)



1930年  
P.A.M. Diracが予言



1932年  
C. Andersonが発見

	質量	スピン	電荷
電子 (e <sup>-</sup> )	m <sub>e</sub>	1/2	-e
陽電子 (e <sup>+</sup> )	m <sub>e</sub>	1/2	+e

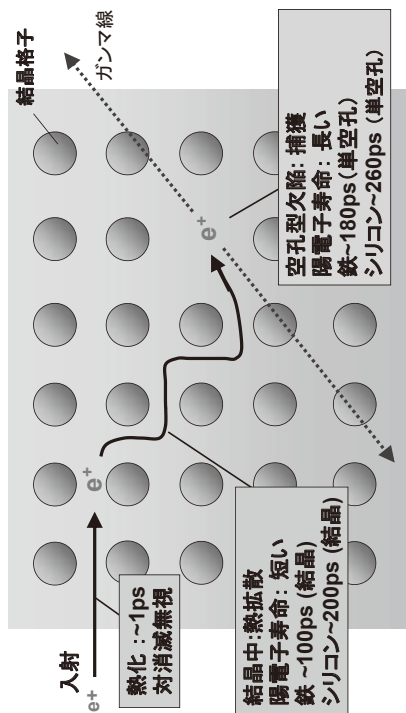
**陽電子：消える魔球**  
電子・陽電子が出会うと対消滅 →ガンマ線を放出

## 陽電子の利用

- ◆ 基礎科学  
素粒子、原子・分子
- ◆ 医療  
PET診断

- ◆ 物質・材料開発  
原子レベル～ナノレベルの構造(特に空孔)分析評価

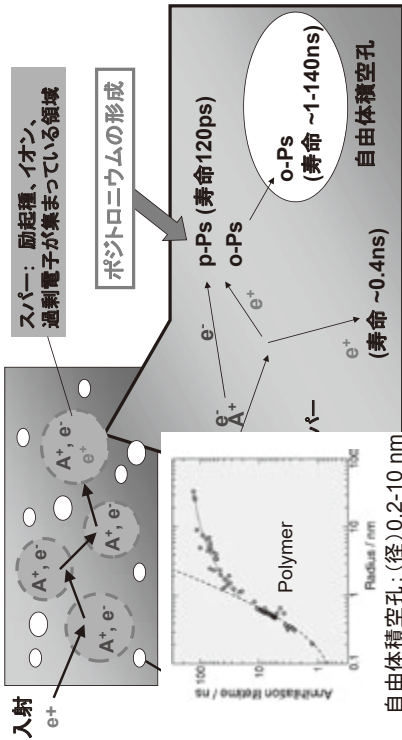
### e<sup>+</sup>: 非絶縁物(金属・半導体)中での振舞



### 陽電子(e<sup>+</sup>)が欠陥のプロープ

RIKEN/IBS/MLL, 産業技術総合研究所

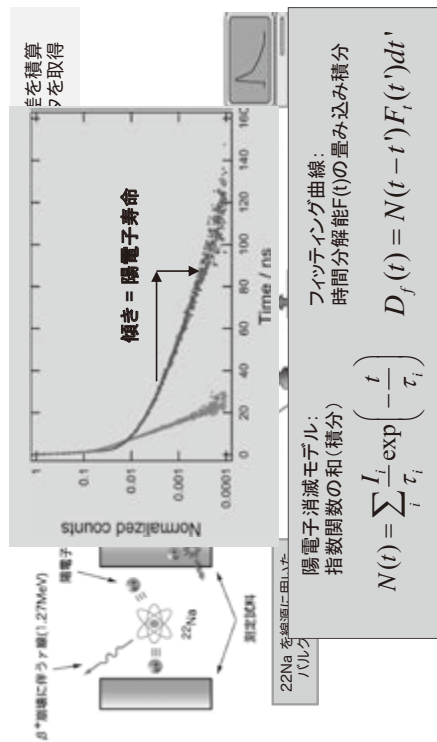
### e<sup>+</sup>: 絶縁物(高分子)中での振舞



### オルト・ポジトロニウム(o-Ps)が空隙のプロープ

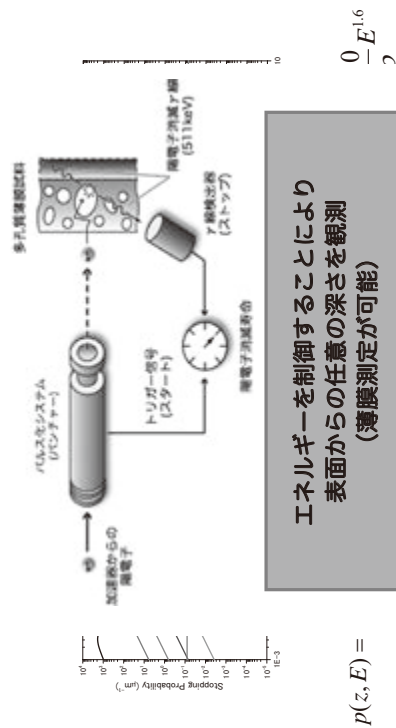
RIKEN/IBS/MLL, 産業技術総合研究所

### RI法: 測定装置の概要



RIKEN/IBS/MLL, 産業技術総合研究所

### (低速)陽電子の打ち込み分布

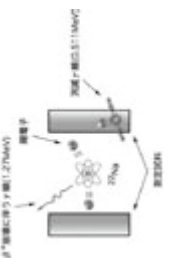


RIKEN/IBS/MLL, 産業技術総合研究所

## 陽電子寿命測定装置

(1) RI(バルク測定)法  
ベータ線の利用

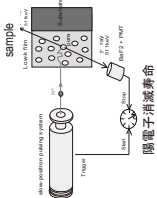
平均情報  
(バルク材)



世界に普及(日本:~100台)  
市販化(日本:数年内予定)

(2) 陽電子ビーム法  
陽電子ビームφ10mmの利用

深さ情報  
(表面・薄膜)



世界数台(日本・ドイツ)  
市販化(日本)



産業技術総合研究所

## 陽電子寿命測定装置

(1) RI(バルク測定)法  
ベータ線の利用

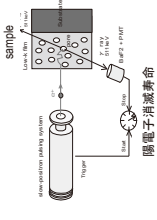
平均情報  
(バルク材)



世界に普及(日本:~100台)  
市販化(日本:数年内予定)

(2) 陽電子ビーム法  
陽電子ビームφ10mmの利用

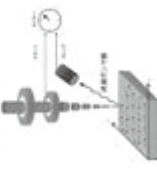
深さ情報  
(表面・薄膜)



世界数台(日本・ドイツ)  
市販化(日本)

(3) マイクロビーム法  
陽電子ビームφ50μmの利用

3次元情報  
(微小試料・複合材料)



世界1台(日本)  
市販化(予定無し)



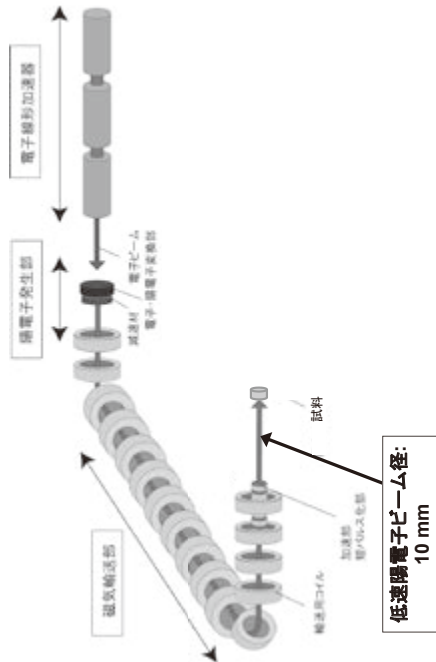
産業技術総合研究所

## 目次

- 陽電子について
- 世界最先端低速陽電子施設の紹介
- 測定例
- (陽電子の)まとめ
- 陽電子以外の量子ビーム技術

産業技術総合研究所

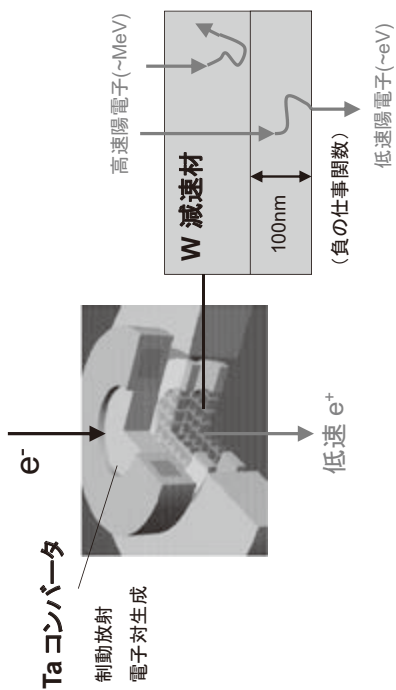
## 陽電子寿命測定装置の概要



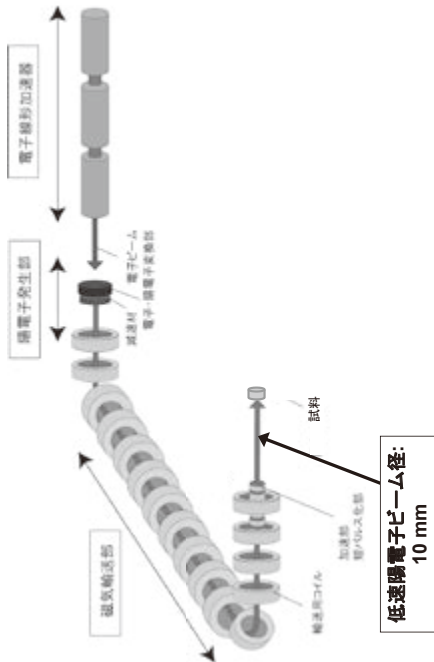
産業技術総合研究所



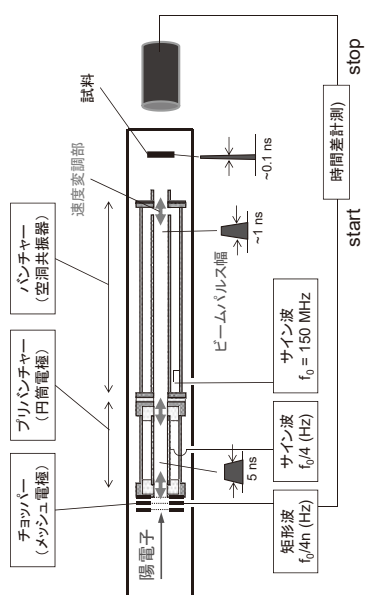
# 低速陽電子ビームの発生



# 陽電子寿命測定：装置の概要

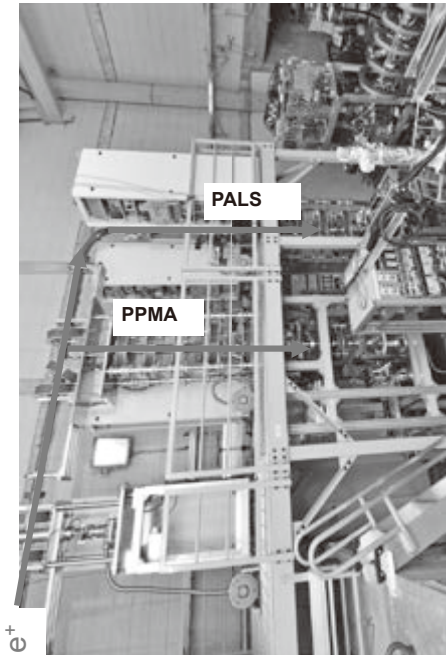


# 産総研のパルス化システム



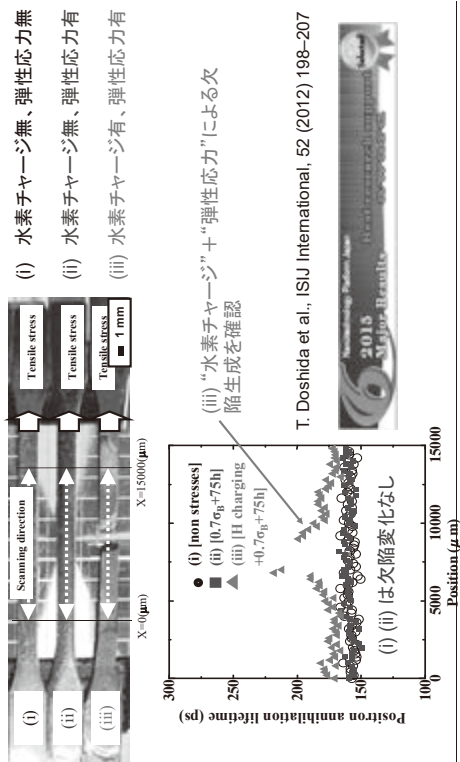
チョップパルサー: 5ns に切り出す  
 プリバンチャー: 5ns → 1ns に圧縮  
 バンチャー: 1ns → 0.1ns に圧縮

# 陽電子測定室

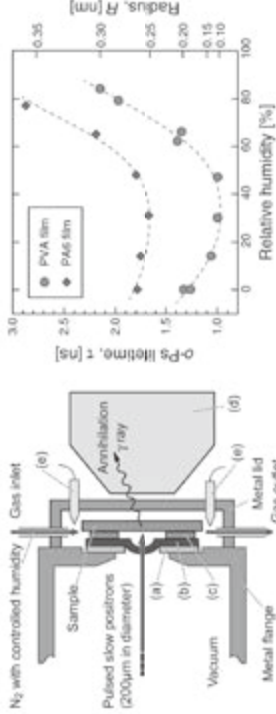




### PPMA測定例1：鉄鋼材料の水素脆化欠陥評価



### PPMA測定例2：実用環境での高分子薄膜自由体積評価

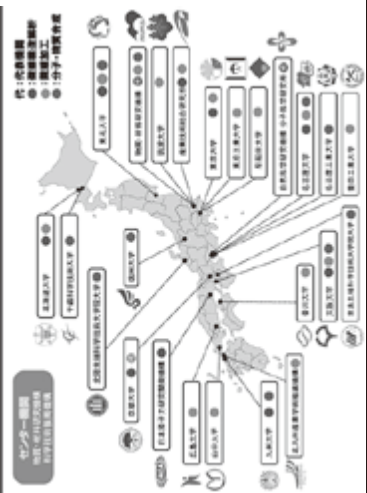


- Measurement of free volume in polymer films (PVA and PA6) as a function of humidity

### 装置公開：ナノテクノロジープラットフォーム

- ナノテクノロジープラットフォームは、ナノテクノロジー関連科学技術において基本となる「微細構造解析」、「分子・物質合成」の3つの技術領域に応じて、25機関が全国をカバーするように選ばれ、先端設備の外部共用を行います。

ナノテクノロジープラットフォームの参画機関(全25機関)



### ご利用方法

陽電子施設は「産総研の先端ナノ計測施設(ANCF)」に参画。窓口は先端機器共用イノベーションプラットフォーム

<http://open-innovation.jp/ibec/>

どうぞお気軽に事前相談申請、お問い合わせをしていただきますようお願い申し上げます。

【お問い合わせ先】  
 分析計測標準研究部門ANCF事務局  
[anfc-contact-m@aist.go.jp](mailto:anfc-contact-m@aist.go.jp)



## 目次

- なぜ陽電子？
- 世界最先端低速陽電子施設の紹介
- 測定例
- (陽電子の)まとめ
- 陽電子以外の量子ビーム技術

## まとめ：低速陽電子ビームによる陽電子寿命測定

### 対応試料：

- 絶縁膜 (例：分離膜、浸透膜などの自由体積評価)
- 半導体 (例：電子デバイス、太陽電子材料などの欠陥評価)
- 金属 (例：原子炉材料、鉄鋼材料などの欠陥評価)

### 分析深さ：

- 表面～数 $\mu\text{m}$  (ビームエネルギー：0.5keV – 30 keV)

### 試料サイズ：

- 10mm x 10mm から 15mm x 15mm まで (通常陽電子寿命測定)
- その他 (PPMA)

### PPMAによるユニークな測定法

- 1次元、2次元の欠陥イメージング (分解能：約50 $\mu\text{m}$ )
- 大気取り出しの実環境測定

## 目次

- 陽電子について
- 世界最先端低速陽電子施設の紹介
- 測定例
- (陽電子の)まとめ
- 陽電子以外の量子ビーム技術

## 高エネルギー、小型X線源の開発

- 低消費電力：バッテリー駆動
- 小型軽量
- 即時のX線射出可
- 長寿命
- 高速撮影可

その場での自動計測に適している

2009.3

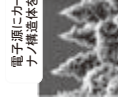


管電圧120 kV

2014. 6



管電圧150 kV  
寿命 1000万ショット以上



電子源にカーボン  
ナノ構造体を使用  
フラッシュ無し

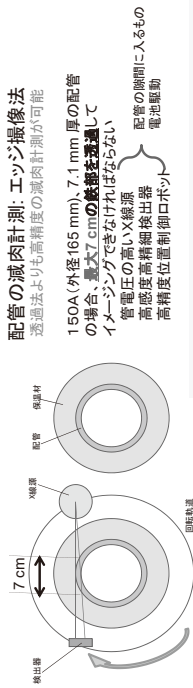


管電圧200 kV  
X線管・高電圧回路の新規開発  
(高エネルギーX線対応検出器との  
組み合わせ)



X線透過  
径～7 cm

## X線配管自動非破壊検査装置



**X線非破壊検査装置**

- X線源
- X線源管電圧 200kV以上
- ロボットと同一の電池で3h以上駆動

**検出器**

- 高エネルギー-X線に対応
- 高精度
- 高精度
- 高精度

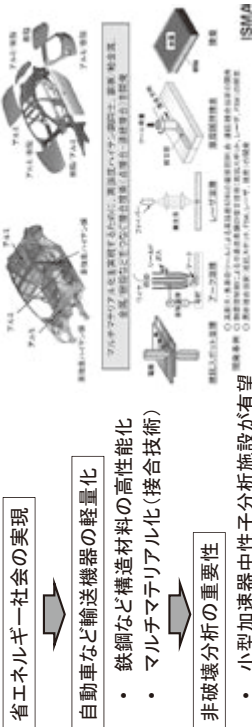
**ロボット**

- X線源と検出器ユニットの位置調整機構
- 水平移動、回転
- 障害物回避

画像検査  
ロボット

産業技術総合研究所

## 中性子：構造材料の評価



**NEDO委託事業**  
「革新的新構造材料等研究開発」

**ISMA**  
新構造材料技術研究組合  
組合員: 39企業、1国研、1大学  
(2017年3月27日)

・多数テーマを実施  
テーマ52  
新日鐵住金、神鋼、JFE、日産アーク、産総研、  
(再委託)NIMS、北大、東工大、理研、KEK  
、有効な人材、ノウハウ  
、適切な設置場所

産業技術総合研究所

## 小型中性子源の構築

Accelerator	
S-band electron accelerator	
Total length	~15m
Acceleration Energy	36.5 MeV
Peak current	275 mA
Beam pulse width	(Max.) 10 μs
Repetition rate	100 Hz
Beam power	10 kW (Max.)

**加速器の特徴:**

- 中性子の発生初率が高くなるためエネルギーを30-40MeVとした。
- 中性子ブラッグエッジを運用時間で測定するため、ハイパワーとした。
- ブラッグエッジが測定しやすいように、100Hzとした。

**ブラッグエッジイメージング**

試料

Bragg edge  
Neutron detector  
Transmitted beam I  
Incident beam I  
ハルス中性子ビーム

2次元検出器

Neutron source, beam line

Optimization for the Bragg edge imaging

- (a) Decoupled moderator (solid methane)
- (b) Flight path length = 8 m
- (c) ~ 10 kW electron beam
- (d) Repetition rate = 100 Hz
- (e) High performance 2D neutron detector

産業技術総合研究所

ご清聴ありがとうございました

産業技術総合研究所



# 量子現象を模倣した光干渉断層イメージング技術の研究 Optical interferometric cross-sectional imaging based on quantum-mimetics

ナノ分光計測研究グループ 白井 智宏

Nanoscale Spectroscopic Measurement Gr., RIMA, AIST/ Tomohiro Shirai

東フィンランド大学 フリバーグ アリ

University of Eastern Finland, Joensuu, Finland/ Ari T. Friberg

## 要旨

量子OCT(光コヒーレンストモグラフィ)に匹敵もしくはそれを凌駕する性能をもつ断層イメージング技術を実現するために、量子現象を古典的に再現する量子模倣アプローチに基づき、量子OCTとスペクトル領域OCTを融合したスペクトル強度干渉断層イメージング法を考案した。本報告では、この新しい断層イメージング法の原理を概説した上で、その実用化に向けた最近の取り組みを紹介する。

## 1. はじめに

低コヒーレンス干渉の原理に基づく光コヒーレンストモグラフィ(OCT: Optical coherence tomography)は、低侵襲かつ高分解能の断層イメージングが可能となることから、生物・医学分野における研究ツールとしてばかりではなく、網膜の断層情報を取得する眼科用の医療診断機器としても広く普及している。その深さ分解能は、原理的には入射光のスペクトル幅が広がるほど向上するが、実際には測定サンプルや光学系内に存在する群速度分散の影響により容易に低下してしまう。

この問題を解決するために、筆者らはスペクトル領域の強度干渉法に基づく新しいタイプのOCTを提案し、これをスペクトル強度干渉断層イメージング法(I-SD-OCT: Intensity-interferometric spectral-domain OCT)と呼んだ。<sup>1,2</sup> この新しい断層イメージング法は、量子もつれ光子対を利用した量子OCT<sup>3</sup>から発想を得て、それを古典理論の枠内で解釈し模倣することにより考案されたものであり、量子OCTに匹敵もしくはそれを凌駕する優れた特長をもつことが理論と実験により明らかにされている。この例が示すように、一般に量子光学の原理に基づく技術を古典的に模倣するアプローチは、少なくともその優れた特徴の一部を、高輝度で操作性の良い古典光源を使って容易に模倣もしくは再現できるため大変有望な概念となっている。<sup>4</sup>

本稿では、新しい断層イメージング法であるI-SD-OCTの原理を概説した上で、その実用化に向けた最近の取り組みとして、実現光学系および本手法に特有のアーティファクトを低減する方法を紹介する。

## 2. スペクトル強度干渉断層イメージング法の原理

スペクトル強度干渉断層イメージング法(I-SD-OCT)は、量子OCTとスペクトル領域の従来型OCT(SD-OCT: Spectral-domain OCT)の両概念を融合することにより考案された新

しいタイプの断層イメージング法である。<sup>1,2</sup> その基本光学系を図 1 に示す。これはマイケルソン型干渉計の出力側に、量子 OCT と同様にビームスプリッター (BS2) を組み込んだ構成となっている。各出力ポートには、SD-OCT と同様にスペクトルを検出すべく、回折格子 (G) と 1 次元検出器 (D1, 2) を組み合わせた分光光学系を設置する。光源 (Source) には、スーパーluminescentダイオードやハロゲン光源など、一般的な広帯域光源を使用する。

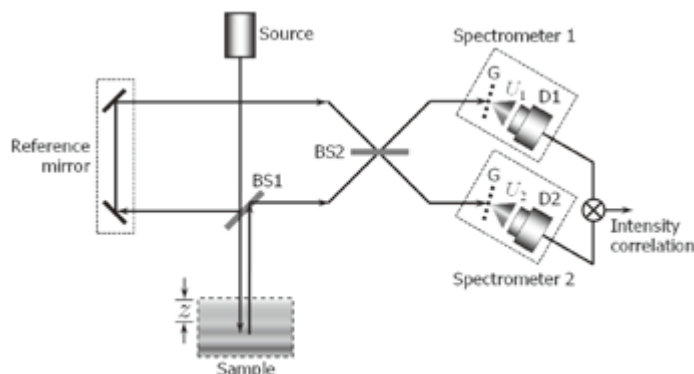


図 1. スペクトル強度干渉断層イメージング法 (I-SD-OCT) の基本光学系

基本性能を理論的に解析するために、測定サンプル (Sample) は単純な反射ミラーであり、その直前に分散媒質 (群速度の逆数  $\beta_1$ 、群速度分散  $\beta_2$ 、長さ  $L$ ) を設置するものと仮定する。最初に量子 OCT で使用される量子もつれ光子対の相関特性を古典的に模倣すべく、2 つの検出器で検出されるスペクトルについて、中心周波数  $\omega_0$  を基準として対称に配置された成分間の強度相関  $C(\omega') = \langle |U_1(\omega_0 + \omega')|^2 |U_2(\omega_0 - \omega')|^2 \rangle$  を評価する。<sup>2</sup> ここで、 $U_1, U_2$  は検出器 D1, D2 に到達する光波の振幅を、 $\langle \dots \rangle$  は平均操作を表す。光波のゆらぎがガウス統計に従うなどの合理的な仮定を幾つか導入することにより、この強度相関が各検出器に到達するスペクトルの平均値の積に帰着することがわかった。これにより、本原理には高速の検出器は必要なく、2 つの平均スペクトルの検出に基づき断層イメージングが可能となることがわかる。

次に、SD-OCT における信号処理を参考に強度相関  $C(\omega')$  のフーリエ変換  $\hat{C}(x)$  を評価する。その結果、正の周波数領域  $x \geq 0$  では、 $x = 0$  を中心とする項と  $x = \tau' = t_1 - t_2 + \beta_1 L$  を中心とする項、および  $x = 2\tau'$  を中心とする項の 3 項の和となることが [ $t_1, t_2$  はそれぞれ光波が測定サンプルおよび参照ミラー (Reference mirror) を経由して、D 1, 2 まで到着する時間]、また入射光のスペクトル幅が広い場合にはこれら 3 項が空間的に分離することがわかった。 $x = 2\tau'$  を中心とする項は測定サンプルの位置および反射率の情報を持つため、この項を I-SD-OCT 信号と呼ぶ。

解析により、この I-SD-OCT 信号は測定サンプルの直前に設置した分散媒質の影響を全く受けないことが明らかとなった。そのため、 $x = 2\tau'$  付近に出現する I-SD-OCT 信号に基づき、群速度分散に不感な断層イメージングが可能となる。一方、従来型 OCT は  $x = 2\tau'$  ではなく、 $\tau'$  付近に測定サンプルの情報を反映した信号が現れることが知られている。この信号位置の差が、分解能の相違を生み出す主要な要因となる。詳細な解析により、I-SD-OCT

の深さ分解能は、従来型 OCT と比較して $\sqrt{2}$ 倍向上することが明らかとなった。

### 3. 実現光学系

I-SD-OCT の原理を検証するための最初の光学系では、従来型の OCT 光学系を若干変形し、I-SD-OCT に必要な 2 つの平均スペクトルを時系列に取得する方法を採用した。<sup>5</sup> この光学系は、従来型 OCT と同様にシンプルな構成であったが、平均スペクトルの時系列測定に伴う不安定性がやや問題となった。その後構築した光学系では、図 1 の基本光学系と同様に、2 台の分光器で 2 つの平均スペクトルを同時に取得する方法を採用したため安定性には優れていたが、光学配置がやや複雑となることが問題であった。<sup>6</sup>

これらの問題を解決するために、最近、実用性と信頼性をあわせ持つ新たな実現光学系を考案した。<sup>7</sup> その光学系を図 2 に示す。図 1 に示す基本光学系で使用されたビームスプリッタ (BS1, 2) はシングルモードの光ファイバカップラ (OFC1, 2) に置き換えられ、さらに分光分析すべき 2 つの光波は、独自に構築された分光光学系へと導かれる。この分光光学系では、1 枚の回折格子 (G) によって分光された 2 つのスペクトルが空間的に分離され、それぞれの平均値が 1 台の CCD カメラによって同時に取得される。広帯域光源には、一般的な OCT でも広く使われるスーパーluminescentダイオード (SLD) を利用した。

このように光ファイバをベースとした光学系は、光学系全体をコンパクトかつフレキシブルに構築できるという点で実用性に優れている。また、2 つのスペクトルをシンプルな分光光学系により同時に取得できるため、測定における安定性と信頼性も確保される。

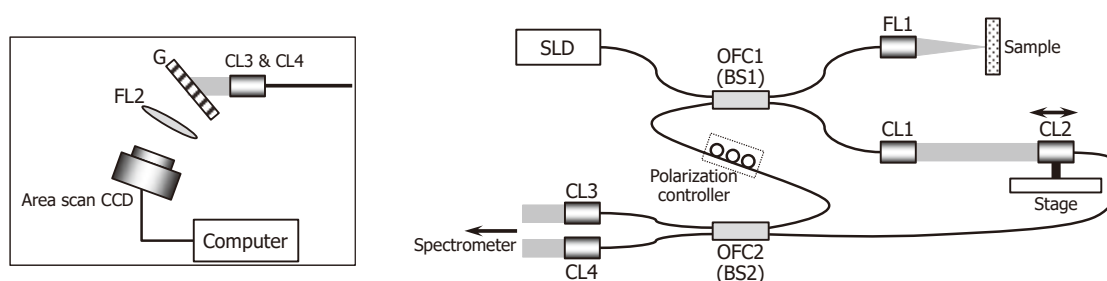


図 2. 光ファイバカップラに基づく I-SD-OCT の実現光学系。(右) 本体、(左) 分光光学系。

### 4. アーティファクトの低減法

図 2 の光学系を利用して顕微鏡用のカバーガラス (厚さ  $50 \mu\text{m}$ ) を測定した結果を図 3 (左) に示す。理論解析により、サンプルからの I-SD-OCT 信号は全て負値となることがわかっているため、下向きの 2 つのパルス状の信号がサンプルの表面と裏面からの反射に対応することがわかる。実際にこの 2 つの信号の間隔を評価することで、カバーガラスの厚さを評価することができる。2 つの信号の中間に存在するパルス状の信号は、量子 OCT でもその存在が明らかにされている不要なアーティファクトである。

アーティファクトは測定サンプルを構成する反射面間の干渉によって発生するため、 $N$  個の反射面から  $N(N-1)/2$  個のアーティファクトが発生する。理論解析により、このアー

ティアファクトの大きさは $\cos(\omega_0\tau_d)$ に比例することがわかった。ここで、 $\omega_0$ は入射光の中心周波数、 $\tau_d$ はアーティファクトを生み出す2面間を光が伝搬する時間である。そのため、入射光の中心周波数 $\omega_0$ をうまく調整すると、アーティファクトを低減することができる。また、分光光学系によるスペクトルの検出過程を考慮すると、光源の中心周波数を調整することと、分光光学系においてスペクトルと検出器の相対位置を調整することが等価であることに気付く。<sup>8</sup> 一般に、光源のスペクトル制御は容易ではないため、後者の方法を利用してアーティファクトの低減効果を実験的に検証した。その結果を図3(中)および(右)に示す。スペクトルと検出器の相対位置は、検出器を機械的にシフトさせる方法、もしくは検出したスペクトルを計算機内で数値的にシフトさせる方法によって調整できるが、いずれの方法を使ってもアーティファクトのみを十分に低減できることが確認された。

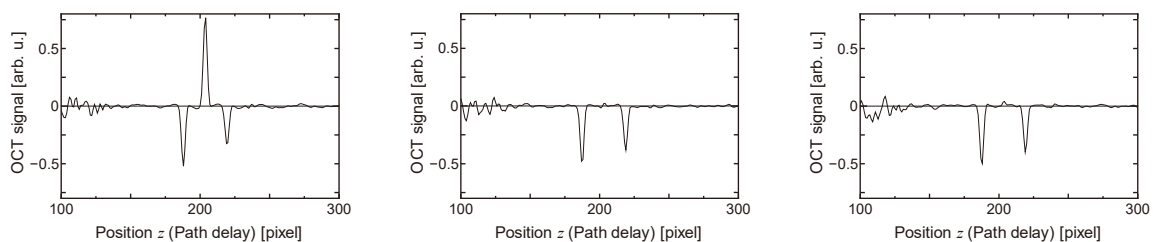


図3. 2面反射サンプルの測定結果。(左)オリジナルの I-SD-OCT 信号、(中)検出器の機械的シフト後の I-SD-OCT 信号、(右)スペクトルの数値的シフト後の I-SD-OCT 信号。

測定サンプルの構造が複雑になり複数のアーティファクトが同時に発生する場合には、上記の方法に基づき全てのアーティファクトを同時に低減することはできない。それは、ある一つのアーティファクトを低減させるために必要なスペクトルのシフト量は(検出器のシフトを考えても良いが、以下ではより簡単なスペクトルのシフトに着目する)、同時に発生する他のアーティファクトに対しては十分に低減させる条件とはならず、逆に増大させる条件になる場合もあるからである。この考察から、スペクトルのシフト量を変化させて I-SD-OCT 信号を生成すると、それぞれの I-SD-OCT 信号に重畳されるアーティファクトの大きさは多様に変化することが予想される。そのため、このようにして生成された複数の I-SD-OCT 信号を平均化すると、アーティファクト成分のみが打ち消され、サンプルの構造を反映した真の I-SD-OCT 信号のみが残存するものと期待される。

この平均化に基づくアーティファクトの低減法を実験的に検証した結果を図4に示す。4つの反射面を持つ測定サンプルとして、図4(左)に示すように、厚さの異なる顕微鏡用のカバーガラスの間にスペーサーを挟み込んだ構造を自作した。スペクトルをシフトさせない場合の I-SD-OCT 信号には、測定サンプルの4つの反射面に対応する真の I-SD-OCT 信号の他、6本のアーティファクトが混在している様子が確認される[図4(中)参照]。しかし、スペクトルのシフト量を変えて複数の I-SD-OCT 信号を生成し、それらを平均化すると、6本のアーティファクトのみが低減され、各反射面に対応する真の I-SD-OCT 信号のみが再現された[図4(右)参照]。さらに複雑な構造をもつ測定サンプルに対しても、同

様の方法で複数のアーティファクトを十分に低減できることを確認している。<sup>7</sup>

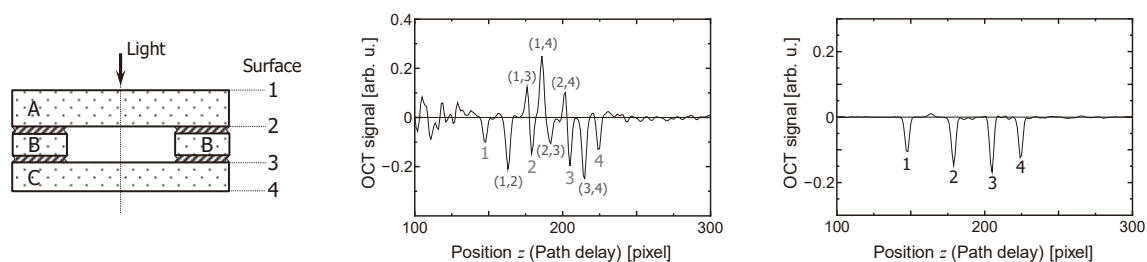


図 4. 4 面反射サンプルの測定結果。(左)サンプルの断面、(中)平均処理前の I-SD-OCT 信号、(右)平均処理後の I-SD-OCT 信号。

## 5. まとめ

本研究では、量子現象を古典的に再現する量子模倣アプローチに基づく新しいタイプの断層イメージング法として、スペクトル強度干渉断層イメージング法 (I-SD-OCT) を提案した。その主な特徴は、以下のように要約される。

- 1) 深さ分解能は、従来型 OCT に比較して $\sqrt{2}$ 倍向上
- 2) 群速度分散に不感 (群速度分散に伴う分解能の低下が起こりにくい)
- 3) ごく普通の広帯域光源を使用 (特殊な量子もつれ光子対は不要)
- 4) 高速検出器は不要
- 5) 深さ方向の計測に、機械的な走査は不要
- 6) 単純な平均操作により、複数のアーティファクトを同時に低減可能

同様のアーティファクトは量子 OCT でも発生することが知られており、これが像の品質を劣化させる重大な問題となっていた。しかし、本研究を通して、I-SD-OCT では比較的単純な平均操作により複数のアーティファクトを同時に十分に低減できることが明らかとなった。さらに、実用的かつ信頼性の高い実現光学系も構築できたことから、本提案技術の実用装置としての展開が大いに期待される。

## 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 (JP16K04990) および Academy of Finland (No. 310511) の助成を受けた。

<sup>1</sup> T. Shirai and A. T. Friberg, *Opt. Lett.* **38**, 115 (2013).

<sup>2</sup> T. Shirai and A. T. Friberg, *J. Opt. Soc. Am. A* **31**, 258 (2014).

<sup>3</sup> For a review, M. C. Teich, *et al.*, *Quant. Info. Proc.* **11**, 903 (2012).

<sup>4</sup> For a review, T. Shirai, “Modern Aspects of Intensity Interferometry with Classical Light,” in T. D. Visser, ed., *Progress in Optics* **62**, 1-72 (Elsevier, 2017).

<sup>5</sup> T. Shirai, *J. Opt.* **17**, 045605 (2015).

<sup>6</sup> P. Ryczkowski, J. Turunen, A. T. Friberg, and G. Genty, *Sci. Rep.* **6**, 22126 (2016).

<sup>7</sup> T. Shirai and A. T. Friberg, *J. Opt.* **20**, 045610 (2018).

<sup>8</sup> T. Shirai, *J. Opt.* **18**, 075601 (2016).



## 量子現象を模倣した光干渉断層イメージング技術の研究

Optical interferometric cross-sectional imaging based on quantum-mimetics

白井 智宏<sup>1</sup>, フリバーグ アリ<sup>2</sup>  
Tomohiro Shirai<sup>1</sup> & Ari T. Friberg<sup>2</sup>

<sup>1</sup> ナノ分光計測研究グループ  
Nanoscale Spectroscopic Measurement Gr., RIMA, AIST

<sup>2</sup> 東フィンランド大学  
University of Eastern Finland, Joensuu, Finland

## 光イメージング技術の進展

“百聞は一見に如かず：Seeing is believing”  
(特に、医学・生物学分野において)  
光を使った高分解能イメージングの役割/重要性が増大

### 分解能を向上させる一般的手法

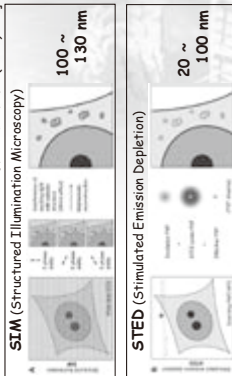
- 1) 短波長化:  $\lambda \rightarrow \lambda/2$
- 2) 高開口数化:  $NA \rightarrow 2 \times NA$

$$\Delta x = \frac{0.61\lambda}{NA}$$

Rayleigh resolution limit

e.g.)  $\Delta x \sim 200 \text{ nm}$   
when  $\lambda = 488 \text{ nm}$ ,  $NA = 1.49$

- 3) 超分解技術 [L. Schemmel, et al., J. Cell Biol. 190 (2010) 165]



## 本日の発表内容

### 1. 研究の背景

- 光を使ったイメージング技術の進展
- 性能向上のための量子模倣アプローチ

### 2. スペクトル強度干渉断層イメージング法の基礎

- 原理と基本性能

### 3. 原理の提案から実用化に向けて

- 光学系の改良
- アーティファクト対策

### 4. 提案技術の意義

## 量子模倣イメージング

「光の量子性(量子もつれ光子対)」を利用した  
量子イメージング

- ★ コーストイメージング [T. B. Pittman, et al., PRA **52**, R3429 (1995)]
- ★ 量子トログラフイ [N. Boto, et al., PRL **85**, 2733 (2000)]
- ★ 量子OCT [A. F. Abouraddy, et al., PRA **65**, 053817 (2002)]

- 常識を覆す優れた機能を実現
- (古典限界を超える)高分解能を実現
- △ ただし、その実現は容易ではない = 光源の特殊性

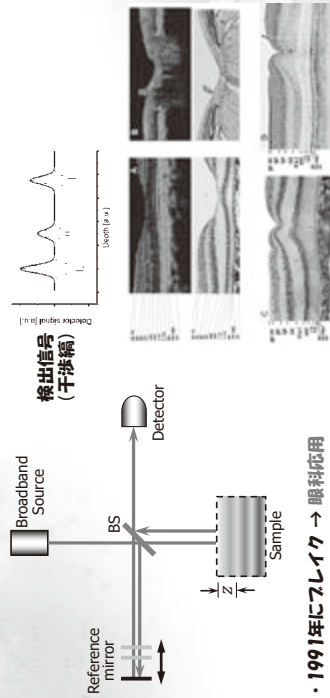
### - 新しいアプローチ:

量子イメージングの特徴を活かしたイメージングを  
古典光を使って実現  
(量子模倣イメージング: Quantum-mimetic imaging)

[Recent review] T. Shirai, Modern Aspects of Intensity Interferometry with Classical Light, in *Progress in Optics* **62**, T. D. Visser, ed. (Elsevier, 2017), pp.1-72.

# 光コヒーレンストモグラフィ

OCT: Optical Coherence Tomography  
(低コヒーレンス干渉の原理に基づく断層イメージング法)

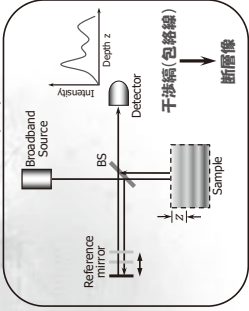


・1991年にスレイク → 眼科応用  
D. Huang, *et al.*, Science **254**  
(1991) 1178.

出典: <http://www.zmb.ont.med.uni-wien.ac.at/forschung/optical-imaging/morphological-imaging/ultra-high-resolution-retinal-at-oct>

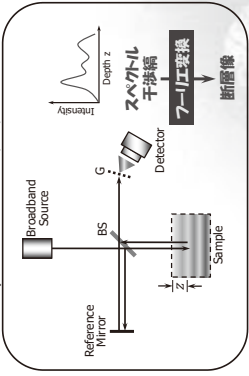
# 従来型OCTのバリエーション

時間領域OCT  
Time-domain (TD) OCT



✓ 最初に考案された原理  
✓ 機械的走査が必要

スペクトル領域OCT  
Spectral-domain (SD) OCT



✓ 機械的走査が不要  
✓ 高速かつ高感度測定  
✓ 現在の主流

(群速度)分散  
↓  
分解能の低下

# 新しい量子模倣OCTの提案

OCTの性能向上を目指す斬新なアプローチ

量子OCT

- A. F. Abouraddy, *et al.*, PRA **65**, 053817 (2002).
- M. B. Nasr, *et al.*, PRL **91**, 083601 (2003).

量子OCTの古典版(量子模倣OCT)

- 位相共役OCT [Etkmen & Shapiro, PRA **74**, 041601(R) (2006)]
- チャープパルスOCT [Kaltenbaek, *et al.*, Nature Phys. **4**, 864 (2008)]

そこで本研究では...

- ・分解能: 2倍 or  $\sqrt{2}$ 倍向上
- ・群速度分散を自動補正

(問題)

1. 光学系が複雑
2. TD-OCTに基づく動作

新しいタイプの量子模倣OCTとして、  
スペクトル強度干渉断層イメージング法を提案

(I-SD-OCT: Intensity-interferometric spectral-domain OCT)

- T. Shirai and A. T. Friberg, J. Opt. Soc. Am. A **31**, 258 (2014).
- T. Shirai and A. T. Friberg, J. Opt. **20**, 045610 (2018).

# 本日の発表内容

研究の背景

光を使ったイメージング技術の進展  
性能向上のための量子模倣アプローチ

## 2. スペクトル強度干渉断層イメージング法の基礎

- 原理と基本性能

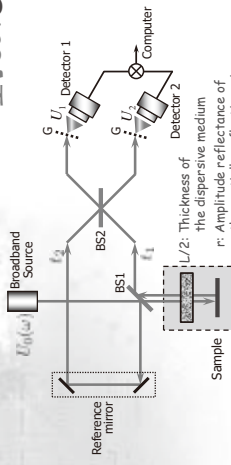
## 3. 原理の提案から実用化に向けて

- 光学系の改良  
- アーティファクト対策

## 4. 提案技術の意義

# 基本光学系

## スペクトル強度干渉層イメージング法 (I-SD-OCT) = 量子OCTとスペクトル領域OCTを融合



- To mimic Q-OCT, ...
1. Beam splitter (BS2) (HOM interferometer)
  2. Intensity correlation
- Similarly to SD-OCT, ...
3. Diffraction gratings (G)

**Fields** at Detector 1 & 2

$$\begin{cases} U_1(\omega) = rU_0(\omega) \exp(i\omega t_1) \exp[i\beta(\omega)L] + U_0(\omega) \exp(i\omega t_2) \\ U_2(\omega) = irU_0(\omega) \exp(i\omega t_1) \exp[i\beta(\omega)L] + U_0(\omega) \exp(i\omega t_2) \end{cases}$$

where  $\beta(\omega) \approx \beta_0 + \beta_1\omega + \frac{1}{2}\beta_2\omega^2$

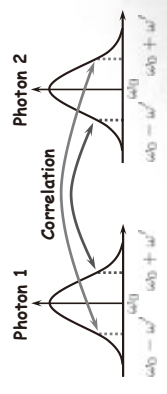
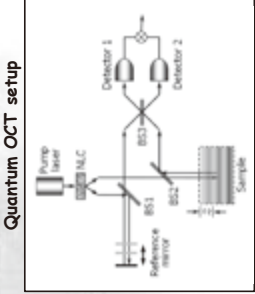
$$\beta_1 = \frac{d\beta}{d\omega} : \text{Inverse of the group velocity}$$

$$\beta_2 = \frac{d^2\beta}{d\omega^2} : \text{Group-velocity dispersion}$$

- T. Shirai & A. T. Friberg, JOSAA **31** (2014) 258.

# 量子もつれ光子対の特性

## Frequency-entangled two-photon light in spontaneous parametric downconversion



Condition:  $\omega_p = \omega_0 + \omega'$   
 $= (\omega_0 + \omega') + (\omega_0 - \omega')$   
 $= (\omega_0 - \omega') + (\omega_0 + \omega')$

$$C(\omega') = \langle |U_1(\omega_0 + \omega')|^2 |U_2(\omega_0 - \omega')|^2 \rangle$$

Classical analogue:

T. Shirai, Prog. Opt. **62** (2017) 1-72.

# 理論解析

T. Shirai and A. T. Friberg, J. Opt. Soc. Am. A **31**, 258 (2014).

Basic quantity:  $C(\omega') = \langle |U_1(\omega_0 + \omega')|^2 |U_2(\omega_0 - \omega')|^2 \rangle$

→ Classical correlation mimicking the frequency-entangled photon pairs !

Assumptions: 1) Gaussian statistics

$$C(\omega') = \langle (|U_1(\omega_0 + \omega')|^2)(|U_2(\omega_0 - \omega')|^2) \rangle + \langle (|U_1^*(\omega_0 + \omega')U_2(\omega_0 - \omega')|^2) \rangle$$

$$= [1 + |\mu|^2(\omega_0 + \omega', \omega_0 - \omega')]^2 \langle |U_1(\omega_0 + \omega')|^2 \rangle \langle |U_2(\omega_0 - \omega')|^2 \rangle$$

where  $\mu(\omega_0, \omega) = \frac{\langle U_1^*(\omega_0)U_2(\omega) \rangle}{\sqrt{\langle |U_1(\omega_0)|^2 \rangle \langle |U_2(\omega)|^2 \rangle}}$

- $|\mu| = 0$ : Statistically uncorrelated
- $0 < |\mu| < 1$ : Partially coherent pulses
- $|\mu| = 1$ : Fully coherent pulses

→ Important features: 1. High-speed detection is not necessary. 2. Very common sources can be employed.

2)  $|\mu|$  is independent of  $\omega'$ .

Fourier analysis of the basic quantity:  $C(x) = \int_{-\infty}^{\infty} C(\omega') e^{-i\omega'x} d\omega'$

# 最終的な表現式

Final expression for a mirror sample (3 terms, for  $x \geq 0$ ):

$$\hat{C}(x) = (1 + |\mu|^2) \langle \hat{c}_0(x) \rangle + \langle \hat{c}_1(x) \rangle + \langle \hat{c}_2(x) \rangle$$

$$\begin{cases} \langle \hat{c}_0(x) \rangle = (|r|^2 + 1)^2 G(x) + 2\text{Re}\{ (r^*)^2 e^{-2i\omega_0 x} G_{\text{Re}}(x) \} : \text{Real} \\ \langle \hat{c}_1(x) \rangle = -2i(|r|^2 + 1)\text{Re}\{ r^* e^{-i\omega_0 x} G_{\text{Re}}(x - r^*) \} : \text{Imaginary} \\ \langle \hat{c}_2(x) \rangle = -|r|^2 G(x - 2r^*) : \text{Real} \end{cases}$$

where

$$G_{\text{Re}}(x) = \int_{-\infty}^{\infty} S^2(\omega') e^{-i\omega'x} d\omega'$$

$$G_{\text{Im}}(x) = \int_{-\infty}^{\infty} S^2(\omega') e^{-i(\omega_0 + \omega')x} e^{-i\omega'\omega_0 x} d\omega'$$

$$\alpha = \omega_0 T + \beta_0 L, \quad r = t_1 - t_2, \quad r^* = r + \beta_1 L$$

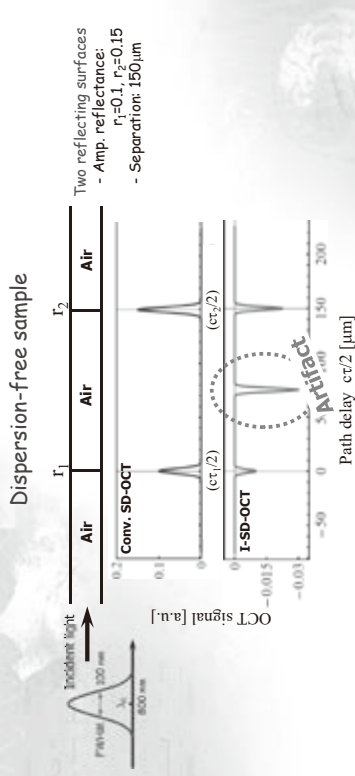
Method for retrieving information about the sample:

- Location = Depth  $\propto |x|$
- Height = Reflectance  $\propto |r|^2$
- Width = Axial resolution



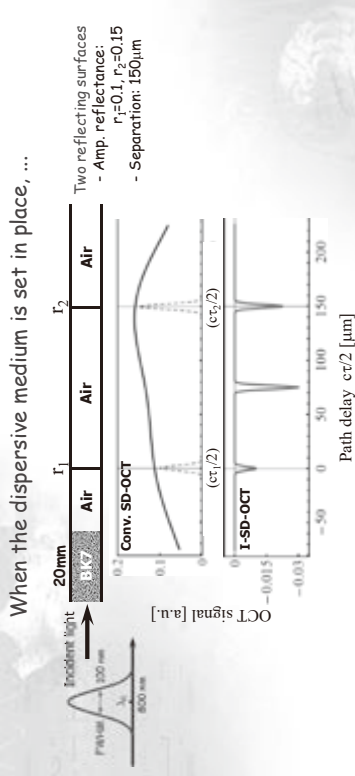
- 重要な特長:
1. 群速度分散 = 不感 (自動補正)
  2. 深さ分解能 =  $\sqrt{2}$  倍向上

# 数値シミュレーション：分散なし



I-SD-OCT signal is narrower than SD-OCT signal.  
**Axial resolution in I-SD-OCT is improved!**

# 数値シミュレーション：分散あり



I-SD-OCT signal remains unchanged.  
**I-SD-OCT is immune to dispersion!**

# 本日の発表内容

1. 研究の背景
  - 光を使ったイメージング技術の進展
  - 性能向上のための量子模倣アプローチ
2. スペクトル強度干渉断層イメージング法の基礎
  - 原理と基本性能
3. 原理の提案から実用化に向けて
  - 光学系の改良
  - アーティファクト対策
4. 提案技術の意義

# これまでの光学系(実現法)

I-SD-OCT can be realized in different ways.

**Modified setup**

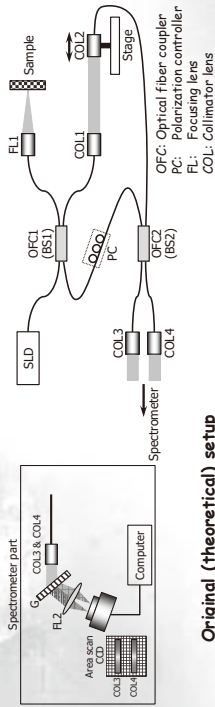
**"Replica" setup**

<b>Setup:</b>	Very simple (fiber-based, a single detector)	Somewhat complicated (bulk-based, two detectors)
<b>Operation:</b>	Possibly unstable (time-series detection)	Stable (simultaneous detection)
<b>Reference:</b>	T. Shirai, J. Opt. 17 (2015) 045605. P. Ryczkowski, et al., Sci. Rep. 6 (2016) 22126.	

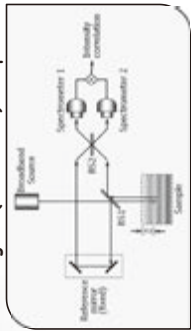


# 実用的な光学系の提案

T. Shirai and A. T. Friberg, J. Opt. 20, 045610 (2018).



Original (theoretical) setup



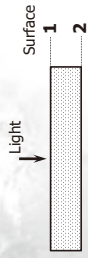
Basic features: This setup...

1. employs two optical fiber couplers, and
2. captures two spectra simultaneously with a single CCD camera.

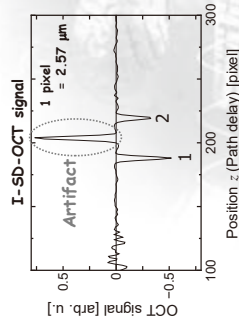
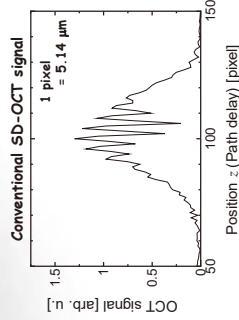
→ Practical & reliable setup

# 実験結果: 2面反射サンプル

Sample with two reflecting surfaces: a single cover glass



Two dips correspond to two surfaces!  
 - Thickness: 50 ( $\pm 10$ )  $\mu\text{m}$  [Matsunami, No. 000]  
 - Refractive index:  $n = 1.53$



# アーティファクトの性質

Cross-terms of two reflecting surfaces

# of surfaces	# of artifacts	Maximum number	Location
N = 2	1	$\frac{N(N-1)}{2}$	Center of the two surfaces
N = 4	6		
N = 10	45		

## 1) アーティファクトの表現式

$$-2 r_1 r_2 \cos[\omega_0(r_2 - r_1)] G(x - r_1^* - r_2^*)$$

for  $N = 2$  (a single artifact)

$$-2 \sum_{i < j} r_i r_j \cos[\omega_0(r_j - r_i)] G(x - r_i^* - r_j^*)$$

for  $N > 2$  (multiple artifacts)

where  $G(x) = \int_{-\infty}^{\infty} S^2(\omega) e^{-i\omega x} d\omega$ ,  $r_m = r_m - t_0$ ,  $r_m^* = r_m + \beta_0 L$ , ( $m = 1, 2, \dots$ )

## 2) 低減法 → 中心周波数 $\omega_0$ の制御

× 光源の中心周波数 (波長) の制御

○ スペクトルと検出器の相対位置の制御 → 物理的, 演算処理

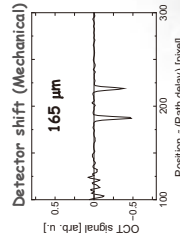
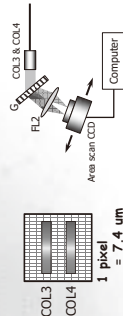
[T. Shirai, J. Opt. 18 (2016) 075601]

# 単一アーティファクトの低減

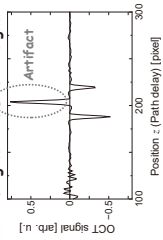
スペクトルと検出器の相対位置を制御するには...

Two options [J. Opt. 18 (2016) 075601]:

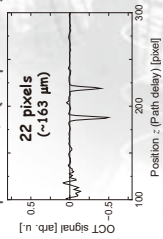
- Detector shift (Mechanical)
- Fringe shift (Computational)



Original I-SD-OCT signal



Spectra shift (Computational)





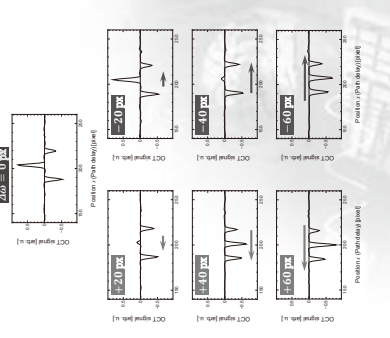
# 多重アーティファクトの低減

多数のI-SD-OCT信号を生成し平均化  
(信号生成の手順: スペクトルと検出器の相対シフト量を変化)

In measurements, one only needs a single shot to obtain a pair of spectral fringes.

New recipe for reducing multiple artifacts (post-processing)

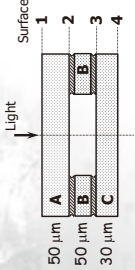
1. Generate many I-SD-OCT signals with different shifts of fringes
2. Correct the signal shifts ( $\propto \beta_2 \Delta\omega$ ) due to GVD
3. Take an average



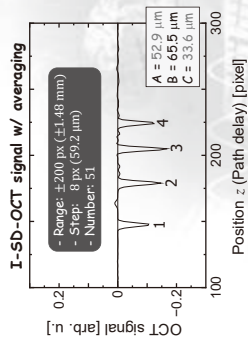
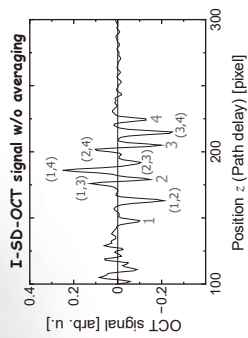
T. Shirai and A. T. Friberg, J. Opt. 20, 045610 (2018).

# 実験結果: 4面反射サンプル

Signals and artifacts are located separately

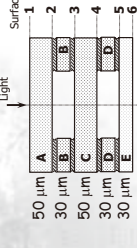


- Refractive index (glass):  $n = 1.53$
- 1 pixel = 2.57  $\mu\text{m}$
- Thickness = [optical path] /  $n$
- (Max.) # of artifacts = 6

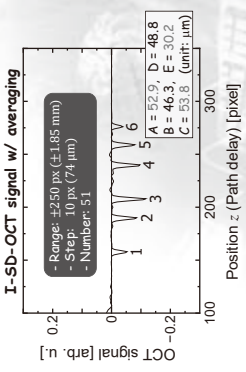
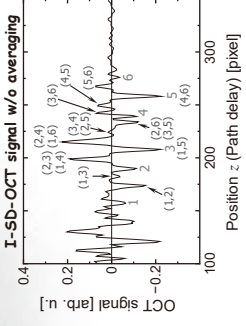


# 実験結果: 6面反射サンプル

Some signals overlap with artifacts



- Refractive index (glass):  $n = 1.53$
- 1 pixel = 2.57  $\mu\text{m}$
- Thickness = [optical path] /  $n$
- (Max.) # of artifacts = 15



# 本日の発表内容

1. 研究の背景
  - 光を使ったイメージング技術の進展
  - 性能向上のための量子模擬アプローチ
2. スペクトル強度干渉断層イメージング法の基礎
  - 原理と基本性能
3. 原理の提案から実用化に向けて
  - 光学系の改良
  - アーティファクト対策
4. 提案技術の意義



# 超微細表面物性の定量計測

ナノ顕微計測研究グループ 井藤 浩志、本田 暁紀

## 1. はじめに

産業技術総合研究所(AIST)のイメージにも由来するのだと思うが、産業界からの走査型プローブ顕微鏡(SPM)に関連する相談も多く、SPM を使う検討をしている方々の苦勞が伝わってくる。多くの場合、ナノテクプラットフォーム事業内で<sup>1</sup>、SPM 技術を習得しながら、連携して解決を行っている。SPM の難しい点は、表面分析である点とその解釈(定量性)である。これらを少しでも補える取り組みの1つとして、SPM の国際標準化への取り組みと、分析技術としての走査型プローブ顕微鏡ベースの赤外分光への取り組みについて紹介したい。

## 2. 国際標準化への取り組み

SPM に関連する技術の標準化は、主に ISO TC201/SC9(走査型プローブ顕微鏡)で行われている。近年、アプリケーションにかかわる標準化が進みつつあり、私自身もナノラフネスや電気測定を担当している。SPM の機能の中で形状の次に使われているのは、ケルビンプローブ力顕微鏡(KPFM)ではないかと思われるので、半導体のキャリア濃度(フェルミレベル)の校正について調べたところ、2014年の論文(2017年秋に当委員会で講演有)<sup>2</sup>より前には、系統的な論文が見当たらなかった。上記の論文は、理論とは多少の乖離があり、P型、N型共に表面準位の影響が強くていて、S字型を横にした曲線になっている。念のために、追試したところ、P型では、表面準位の影響と思われる曲線になったが、N型ではそのようにならなかった。これは、前述の論文と表面処理が異なるためである。いくつかの表面処理を試したところ、理論予測に近い直線が得られる表面処理条件を見出すことが

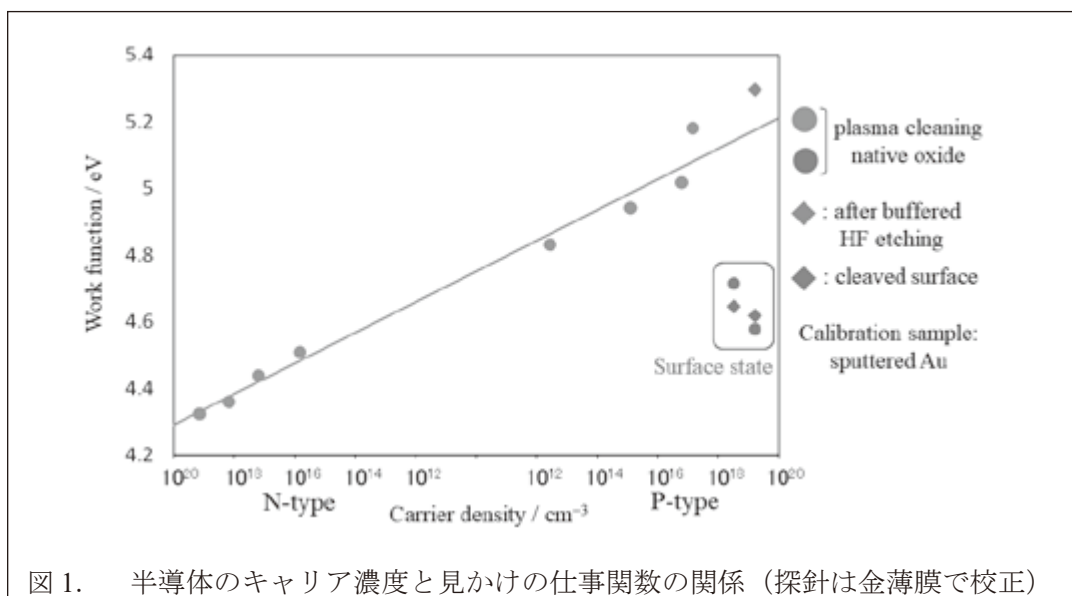


図1. 半導体のキャリア濃度と見かけの仕事関数の関係 (探針は金薄膜で校正)

できた。図1は複数のウェハーを用意して、ホール測定の結果(キャリア濃度)とKPFMで測定されたみかけの仕事関数をプロットしたものである。P型高濃度領域では、水素化した場合、自然酸化膜上、および研磨表面(荒れたランダム表面)で測定した場合で違いがでており、表面準位の影響であることがわかる。他方、N型では、自然酸化膜上で測定した場合は、素直な直線であった。これらの測定においても、探針、および、ウェハー表面をプラズマクリーニングすることで、表面の汚れ(水や有機物汚染等)によるデータのバラツキを抑えた。(P型のデータはクリーニングが不十分なため、バラツキがある。)この技術を工業(国際)標準にするためには、校正曲線、表面処理、KPFM法の要件などの細部を詰める必要がある。まだまだ不十分ではあるが、国際標準化にむけて上記の改善に取り組んでいる。

### 3. 分析技術としてのナノ赤外分光

従来から言われていることであるが、形状だけでなく、原子の種類を見分けるためのとりくみが多数行われている。その代表的なものが、原子レベルの力分光や探針増強ラマンであるが、最近、AFMベースの赤外分光装置(NanoFTIR)が実用化されつつある。NeaSpec社の協力を得て、NanoFTIR装置の分解能について、系統的に調べた。テストサンプルは、以前我々が試作したナノスケールのグレーティング作成技術を利用して、10 nmクラスのSiとSiO<sub>2</sub>が交互に埋め込まれた試料を利用した。図2は、Si上とSiO<sub>2</sub>上で明瞭にスペクトルの違いが見えている。スペクトルが10 nm分解能で分離できるのであれば、十分に複合材料の分析に使うことが可能と思われる。

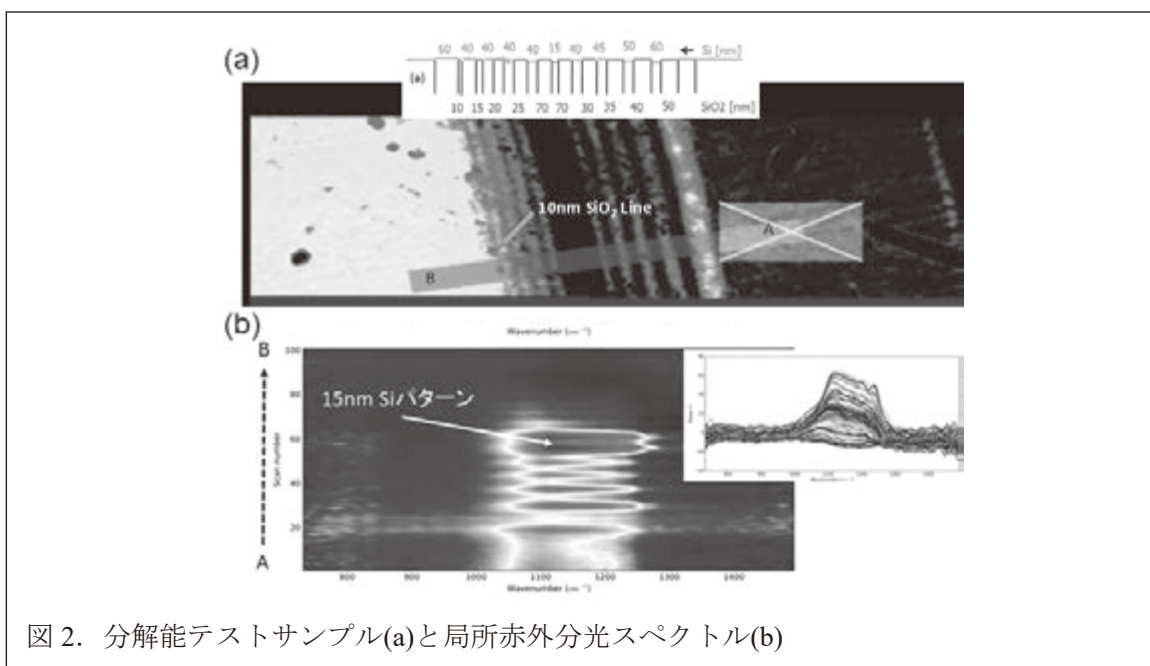


図2. 分解能テストサンプル(a)と局所赤外分光スペクトル(b)

<sup>1</sup> <https://unit.aist.go.jp/rima/nanotech/>

<sup>2</sup> M. Arita, et. al, Appl. Phys. Lett. 104, 132103 (2014).

## JSCA表面化学分析国際標準化セミナー2018

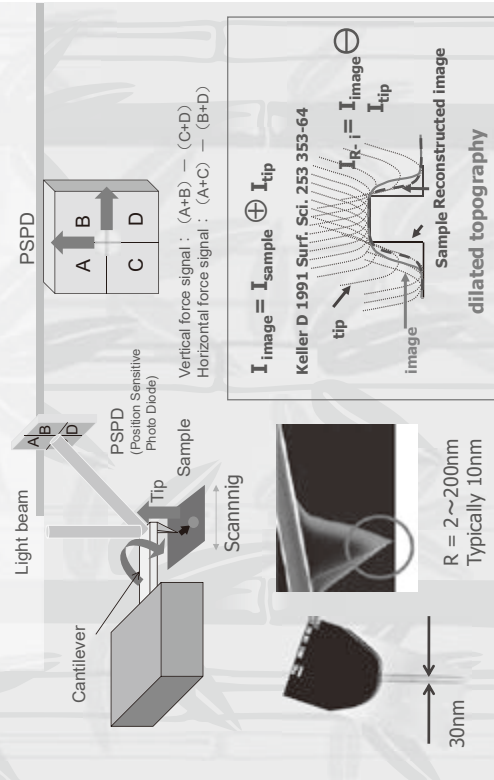
— 表面分析・マイクロビームアナリシスにおける国際標準化の動向 —

走査型ナノプローブ技術に関する国際標準化の進展  
～ 既刊の規格体系、及び開発中の規格の適用範囲 ～

井藤 浩志 (産業技術総合研究所)

[h.itoh@aist.go.jp](mailto:h.itoh@aist.go.jp)

## Scanning Probe Microscope (SPM)



### ISO/TC 201 Surface chemical analysis

ISO/TC 201/SC 9/CAG	Chairman's advisory group
ISO/TC 201/SC 9/S6 1	Effects of temperature and humidity on dimensional atomic force microscopy (AFM) measurements
ISO/TC 201/SC 9/S6 2	Use of NSOM/SNOM
ISO/TC 201/SC 9/S6 3	Nanoscale roughness measurement
ISO/TC 201/SC 9/S6 4	Use of STM
ISO/TC 201/SC 9/WG 3	Basic dimensional calibration of SPMs
ISO/TC 201/SC 9/WG 4	Application-oriented dimensional SPM calibrations
ISO/TC 201/SC 9/WG 5	Calibration of probes
ISO/TC 201/SC 9/WG 6	Use of ESFM
ISO/TC 201/SC 9/WG 7	Mechanical Properties of Materials

- ・表面化学分析国際標準化委員会 (JSCA)
- ・表面化学分析国際標準化委員会・走査型プローブ顕微鏡ワーキンググループ (JSCA SPM-WG)
- ・学振 167 委員会標準化WG
- ※ 表面化学分析国際標準化委員会は、ISO TC201とTC202に対応する国内審議団体
- ISO TC201: 分析のTC, XPS(ESCA)・AES・SIMS・SPMの分析ISOを作っているISOの技術委員会

### ISO/TC 201 Surface chemical analysis

ISO/TC 201/SC 9/CAG	Chairman's advisory group
ISO/TC 201/SC 9/S6 1	Effects of temperature and humidity on dimensional atomic force microscopy (AFM) measurements
ISO/TC 201/SC 9/S6 2	Use of NSOM/SNOM
ISO/TC 201/SC 9/S6 3	Nanoscale roughness measurement
ISO/TC 201/SC 9/WG 3	Basic dimensional calibration of SPMs
ISO/TC 201/SC 9/WG 4	Application-oriented dimensional SPM calibrations
ISO/TC 201/SC 9/WG 5	Calibration of probes
ISO/TC 201/SC 9/WG 6	Use of ESFM
ISO/TC 201/SC 9/WG 7	Mechanical Properties of Materials

- Secretariat: KATS (韓国)
- 議長: Dr. Haessong Lee (KATS)
- 事務局: Dr. Sang-Joon Cho (KATS)
- P-member 9カ国: 中国(SAC), ドイツ(DIN), ハンガリー(MSZT), 韓国(KATS), 日本(JISC), ロシア(GOSTR), 米国のANSI, 英国(BSI), スウェーデン(AENOR)
- O-member 7カ国: オーストラリア(SA), オーストラリア(ASI), フィンランド(SFS), フランス(AFNOR), スウェーデン(SIS), ルーマニア(ASRO), スイス(SNV)
- 2015年時点



走査プローブ顕微鏡に関連するISO規格一覧  
(ISO TC201 SC1:用語  
SC9: プローブ顕微鏡)

策定済みの規格

- ISO 18115-2:2013 Terms used in scanning-probe microscopy
- ISO 28600:2011 **Data transfer format for scanning-probe microscopy**
- ISO 27911:2011 Definition and calibration of the lateral resolution of a near-field optical microscope
- ISO 11039:2012 Measurement of drift rate
- ISO 11952:2014 Determination of geometric quantities using SPM: Calibration of measuring systems
- ISO 13095:2014 **Procedure for in situ characterization of AFM probe shank profile used for nanostructure measurement**
- ISO 13083 Standards on the definition and calibration of spatial resolution of electrical scanning probe microscopes (ESPMs) such as SSRM and SCM for 2D-dopant imaging and other purposes
- ISO 11775 Determination of cantilever normal spring constants (ばね定数)

ISOで審議中の規格案

- TR 13096 **Guide to the description of AFM probes**
- WD 21222 **Guideline for the determination of elastic modulus for compliant materials using atomic force microscope**
- PWT 22130 ナノ粒子形状

太字は日本提案

<https://www.iso.org/committee/354756.html>

**ISO/TC 201/SC 9**  
Scanning probe microscopy

About

Secretariat: **IMES**

- Secretary: Dr Hoon Kyu, Sook
  - Chairperson (until end 2020): Dr Seung Jaeh Cho
  - ISO Technical Programme Manager: Mr Soghraha Saegheh
  - ISO Editorial Programme Manager: Mr David Reid
- Creation date: 2004

Quick links

- Work programme: Drafts and new work items
- Working jobs: on ISO/TC and Public information library
- ISO Electronic applications: IT tools that help support the standards development projects

6  
published ISO standards\*  
under the direct responsibility  
of ISO/TC 201/SC 9

3  
ISO standards under  
development\*  
under the direct responsibility  
of ISO/TC 201/SC 9

9  
Participating members

7  
Observing members

- Standard and/or project under the direct responsibility of ISO/TC 201/SC 9 Secretariat (s)
- ISO 11028:2012 Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Measurement of drift rate
- ISO 11775:2015 Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Determination of cantilever normal spring constants
- ISO 11952:2014 Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Determination of geometric quantities using SPM: Calibration of measuring systems
- ISO 13083:2015 Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Standards on the definition and calibration of spatial resolution of electrical scanning probe microscopes (ESPMs) such as SSRM and SCM for 2D-dopant imaging and other purposes
- ISO 13095:2014 Surface chemical analysis – Atomic force microscopy – Procedure for the characterization of AFM probe shank profile used for nanostructure measurement
- ISO 27911:2011 Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Definition and calibration of the lateral resolution of a near-field optical microscope
- Standard and/or project under the direct responsibility of ISO/TC 201/SC 9 Secretariat (s)
- ISO/TS 11942 (under development) Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Determination of geometric quantities using SPM: Calibration of measuring systems
- ISO/CD 1813208 (under development) Surface chemical analysis – Scanning-probe microscopy – Guidelines for the description of AFM probe properties
- ISO/CD 23222 (under development) Surface chemical analysis – Scanning probe microscopy – Guidelines for the determination of elastic modulus for compliant materials using atomic force microscope

赤字：日本から

6  
published ISO standards\*  
under the direct responsibility  
of ISO/TC 201/SC 9

3  
ISO standards under  
development\*  
under the direct responsibility  
of ISO/TC 201/SC 9

ISO 18115の公開サイト  
(Part 1:27,799円、Part 2: 22,183円 = 49,982円)

SPM用語は Part 2

**NPL**  
<http://www.npl.co.uk/science-technology/surface-and-nanoanalysis/research/international-standards-and-traceability/vocabulary-of-some-800-terms-for-surface-chemical-analysis-iso>

**AVS**  
<https://www.avs.org/Chapters/Pacific-Northwest/Technical-Resources>

**EMSL**  
<http://www.emsl.pnl.gov/emslweb/vocabulary>

**AIST**  
[http://www.aist.go.jp/aist\\_e/dept/iso.html](http://www.aist.go.jp/aist_e/dept/iso.html)

ISO 18115で検索すると出てくるサイト

ISO 18115-2:2013  
Surface chemical analysis -- Vocabulary -- Part 2: Terms used in scanning probe microscopy

ISO 18115-2:2013  
Surface chemical analysis -- Vocabulary -- Part 2: Terms used in scanning probe microscopy

日本規格協会 <http://www.jsa.or.jp/store/iso.html>

規格番号 ISO 18115-2:2013  
標準 Surface chemical analysis -- Vocabulary -- Part 2: Terms used in scanning probe microscopy  
標準使用 表面化学分析 -- 用語 -- 第2部: 走査型プローブ顕微鏡を用いた用語  
状態 有効  
規格コード  
発行年月日 2013-11-04  
JIS-K0147-2  
TC ISO/TC 201/SC 1  
ICS 81.040.71  
71.040.40  
解説書 解説書なし

ISO18115で検索  
[http://www.aist.go.jp/aist\\_e/dept/iso.html](http://www.aist.go.jp/aist_e/dept/iso.html)  
<https://www.iso.org/obp/ui/#iso:std:iso:18115:-2:ed-2:vi:en>

ISO/TC 201/SC 9 Scanning probe microscopy

About Contact details Structure Liaisons Meetings Tools

Subcommittees/Working Groups:

Subcommittee/Working Group	Title
ISO/TC 201/SC 9/SG 1	Effect of temperature and humidity on dimensional atomic force microscopy (AFM) measurement. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 2	Chairman's advisory group. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 3	Use of NANOGRAM. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 4	Nanoscale roughness measurement. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 5	Basic dimensional calibration of SPMs. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 6	Application-oriented dimensional SPM calibrations. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 7	Use of DTM. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 8	Calibration of probes. The converter can be reached through the secretariat.
ISO/TC 201/SC 9/SG 9	Use of ESEM. The converter can be reached through the secretariat.

ISO TC 201/SC9/WG7 Mechanical Properties of Materials

ナノラフネス

SCM・SSRM校正

Elastic Modulus

VAMAS-TWA2/29  
Pre Standardization  
Interlaboratory test

TWA-2/29

走査型プローブ顕微鏡(SPM)の技術分野

○セミクロンオーダーからナノオーダーまで表面の微細構造の観察が可能。

SPMとは

SPMの重要な活用分野

- 半導体素子の微細化の測長/管理
- MEMS等の構造-不良解析
- 環状ランジスタ等の電極表面粗さ解析
- ハイオ-生命科学における生体分子観察への応用

【参考】Intelの微細化ロードマップ(2014)

Intel Technology Leadership

引用: 日本分析機器工業会  
<http://www.jaima.or.jp/jp/basic/en/spm.html>

試料形状(凹凸)取得と同時に電流や電位、硬度や粘弾性といった試料表面の物性情報を反映した信号の画像を取得

TWA-2/29

AFM Nano-scale roughness measurement

【ターゲット】 ナノ表面研磨や微細化構造の進展が著しい半導体分野など

【目的】 ナノスケールの定量評価方法(ナノ粒子径、ナノスケールのラフネス)の開発と国際標準化

を目指す。

【効果】 日本の走査プローブ顕微鏡計測産業の技術競争力の強化とユーザーの利便性の向上

ナノラフネス計測技術の国際標準化の推進

1. バックグラウンドノイズ

- Roughness on S(100) at 0 nm field of view

2. スキャナーのZ方向の弓形(お椀型)歪み

- Wide field of view (2 μm, 20 μm, 80 μm) on flat S(100) (or SiC)

3. 探針形状効果

- Image of certain film at 2 μm field of view
- Tip shape measurement (PAOI + Blind reconstruction)

VAMASで上記3つの取り扱いに関する取扱い・ガイドライン化

Measured contact force (Atomic force) Feedback control Z displacement measurement Laser XY Z 3D profile

**Surface Chemical Analysis**  
Technical Work Area 2

**Project 24**  
**Guidelines for Shape and Size Analysis of Nano-particles by Atomic Force Microscopy**

**Objectives**  
The objective of the project is to establish the practical guidelines of the quantitative measurement of the size and shape of spherical nanoparticles through the conduction of a round-robin test (RRT).  
The guidelines to be established include the protocols on the technical terms, the calibration of measuring systems, the acquisition of images by Atomic Force Microscopy (AFM), and the subsequent image processing.  
Proposed activities include the preparation and realization of RRT with the objective to obtain laboratory reproducibility of the dimensional measurements of nanoparticles using the developed protocols.

size and shape of nano-particles are critical for the performance of industrial nano-products.

**Call for Participation**

**Dr. Daisuke FUJITA**  
VAMAS TWA 2, SPM Coordinator  
National Institute for Materials Science,  
Japan  
Email: fujita.daisuke@nims.go.jp

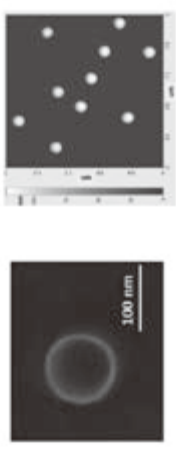


Figure 1: SEM image of the reference material, SiO<sub>2</sub> nano-spherical particle on a Si(001). AFM image of the silica nano-particles.

<http://www.vamas.org/>

走査型プローブ顕微鏡に  
関連するISO国際標準化の進展

2004~  
用語  
データフォーマット

ISO 28600 (データフォーマット)  
ISO 18115-2 (用語集)

英国S博士 Language is power!

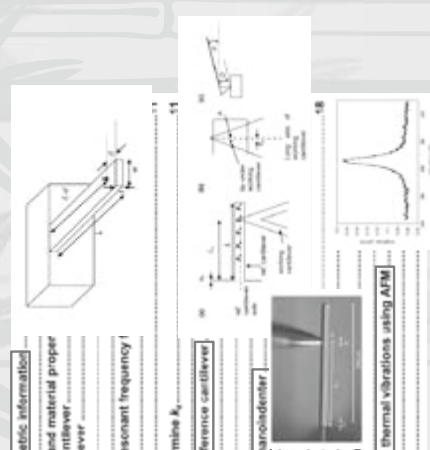
2008~  
分解能  
機器の校正

ISO 27911 (NSOM分解能)  
ISO 13083 (E-SPM分解能)  
ISO 11039 (ドリフト)  
ISO 11952 (SPM校正)  
ISO 13095 (羅針形状)  
ISO 11775 (ばね定数)

将来展望  
2015~  
ナノ物性測定法  
物性量の校正法

E-SPM校正、機械物性、SPMラフネス

11775 Determination of cantilever normal spring constants  
垂直方向のばね定数の決定



5.2.1 Method  
5.2.2 Measuring the required dimensions and material proper  
5.2.3 Determining  $k_s$  for the rectangular cantilever  
5.2.4 Determining  $k_s$  for the tapered cantilever  
5.2.5  $k_s$  for the tapered cross-sections  
5.2.6  $k_s$  to account for coating  
5.3  $k_s$  using plan view dimensions and resonant frequency  
5.3.1 Determining  $k_s$   
5.3.2 Uncertainty  
6 Static experimental methods to determine  $k_s$   
6.1 Introduction  
6.2 Static experimental method with a reference cantilever  
6.2.1 Set-up  
6.2.2 Determining  $k_s$   
6.2.3 Uncertainty  
6.3 Static experimental method using a sapphire  
6.3.1 Introduction  
6.3.2 Determining  $k_s$  for a tipped or tipless  
6.3.3 Uncertainty  
6.4 Static deflection calibration  
6.4.1 Introduction  
7 Dynamic experimental methods to determine  $k_s$   
7.1 Introduction  
7.2 Dynamic experimental method using thermal vibrations using AFM  
7.2.1 Determining  $k_s$   
7.2.2 Uncertainty

4.2 Methods for the determination of AFM normal spring constant

There are many methods to determine the normal spring constant, these are classified as:

(a) The dimensional methods, where  $k_s$  is determined from the cantilever material and the geometrical properties. In this method any structural defects are not included.

(b) The static experimental methods, where  $k_s$  is determined by measurement of the static deflection of the cantilever under an applied force.

(c) The dynamic experimental methods, where  $k_s$  is determined by measurement of the dynamic properties of the cantilever.

In this standard, we describe procedures for a total of five methods with one or two methods in each category. Use one or more of the methods to determine  $k_s$  and its associated uncertainty,  $u(k_s)$ . Which method or methods are used depends on the time, equipment and the accuracy that the user requires  $k_s$ . Some advantages and disadvantages of the methods are given in Table 1.

Table 1—Summary of the advantages and disadvantages of the methods in ISO 11775

Clause	Method	Advantages	Disadvantages
5.2	Dimensional measurement	Simple. Allows one to see why $k_s$ varies from cantilever to cantilever.	Does not include defects. Slow and time consuming.
6.2	Static experimental measurement using a reference cantilever or a nanoindenter	Can be made traceable to SI.	Potential to damage the cantilever. Can be time consuming and in some cases requires expensive equipment.
7.2	Dynamic experimental measurement by thermal vibrational method	Fast if AFM instrument contains reference software and hardware. Can be made traceable to cantilever compatibility for cantilevers of a given design.	Uncertainty can be higher.



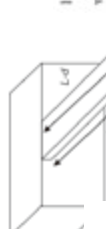
# 寸法と共振を利用するばね定数計算式

$$① \quad k = 2\pi^3 l^3 w \sqrt{\rho^3 / E f_0^3}$$

BEIJINGCHINA 2015

② Sader法

<http://www.ampc.ms.unimelb.edu.au/afm/>



$l=224 \times 10^{-6} [\text{m}]$  カンチレバーの長さ  
 $w=35 \times 10^{-6} [\text{m}]$  カンチレバーの幅  
 $\rho=2.34 \times 10^3 [\text{kg}/\text{m}^3]$  カンチレバーの材料の密度  
 $E=169 \times 10^9 [\text{N}/\text{m}^2]$  カンチレバーの弾性率 (ヤング率)  
 $f_0=160 \times 10^3 [\text{Hz}]$  共振周波数  
 をそのまま入れる。SI 単位系  
 $k=27.5 [\text{N}/\text{m}]$  バネ定数

$$k = \frac{Et^3 w}{4l^3}$$

ISO11775で採用された式

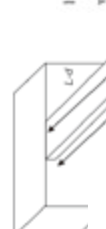
# 寸法と共振を利用するばね定数計算式

$$① \quad k = 2\pi^3 l^3 w \sqrt{\rho^3 / E f_0^3}$$

BEIJINGCHINA 2015

② Sader法

<http://www.ampc.ms.unimelb.edu.au/afm/>



$l=224 \times 10^{-6} [\text{m}]$  カンチレバーの長さ  
 $w=35 \times 10^{-6} [\text{m}]$  カンチレバーの幅  
 $\rho=2.34 \times 10^3 [\text{kg}/\text{m}^3]$  カンチレバーの材料の密度  
 $E=169 \times 10^9 [\text{N}/\text{m}^2]$  カンチレバーの弾性率 (ヤング率)  
 $f_0=160 \times 10^3 [\text{Hz}]$  共振周波数  
 をそのまま入れる。SI 単位系  
 $k=27.5 [\text{N}/\text{m}]$  バネ定数

$$k = \frac{Et^3 w}{4l^3}$$

ISO11775で採用された式

# Atomic Force Microscope Cantilevers (Calibration method of Sader)

## Online Calibration

Use this form to perform an online calibration of the normal and torsional spring constants of rectangular AFM cantilevers. Please enter the length and width (for torsion), the resonant frequency (for k<sub>z</sub>) and the corresponding quality factor, and press the calculate button.

## Normal spring constant calculated using the Sader method

J. C. Sader, J. M. M. Chou and S. Mulvaney, Rev. Sci. Instrum., 70, 3607 (1999)

Length (mm):

Frequency (kHz):

Fluid Viscosity (kg/m<sup>3</sup>):

Width (mm):

Quality factor:

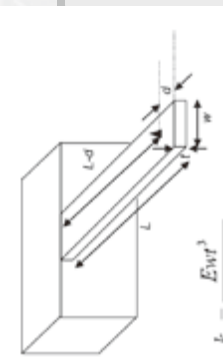
Fluid Viscosity (kg/m<sup>3</sup>):

Normal k (N/m):

Clear  Calculate

<http://www.ampc.ms.unimelb.edu.au/afm/calibration.html>

# ISO 11775:5.2 k<sub>z</sub> using formulae requiring 3D geometric information

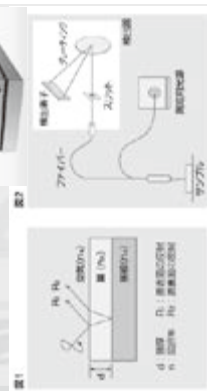


$$k_z = \frac{Ewt^3}{4(L-d)^3}$$

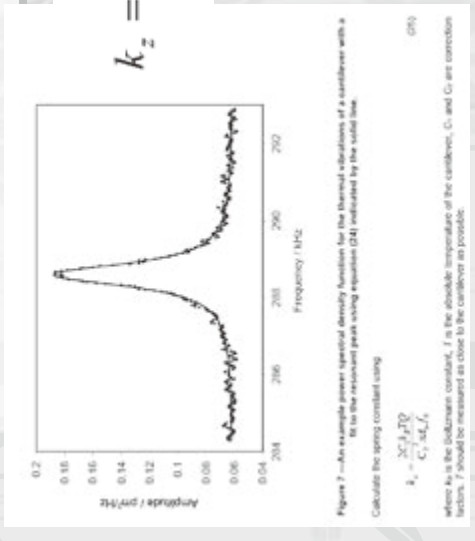
E: Young's modulus

厚さは分光顕微鏡計で計測した値を利用 (Photral FE3000)

(Photral FE3000)



# Thermal method

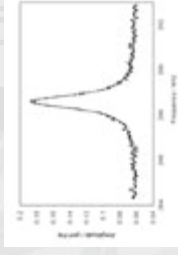


C1: モードに関する定数  
0.9707  
C2: 光学感度係数

$$k_z = \frac{2C_1 k_B T Q}{C_2 \pi A_0 f_0}$$

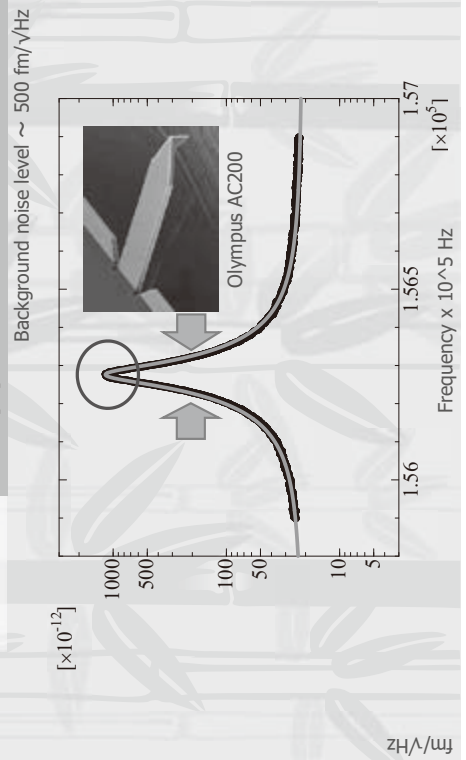
$$A = A_{white} + \frac{A_0 f_0^4}{Q^2} \left[ (f^2 - f_0^2)^2 + \frac{f^2 f_0^2}{Q^2} \right]^{-1}$$

$f_0$ は正確に読めるがQは正確に計測しにくい  
一般的なAFMでは、ノイズレベルが誤差になるため  
数N/m以上のカンチレバーでは誤差が非常に  
大きくなる



$$A = A_{white} + \frac{A_0 f_0^4}{Q^2} \left[ (f^2 - f_0^2)^2 + \frac{f^2 f_0^2}{Q^2} \right]^{-1}$$

# Thermal Method under vacuum with laser Doppler interferometer



# Comparing Two methods

Spring Constant of AC200

- Laser Doppler in vacuum: 10.2 N/m (Noise Level ~ 500 fm/√Hz)  
原子間力顕微鏡利用時は、光学感度係数を正確に測定しておくことが必要
- Dimensional method : 10.4 N/m (Thickness measured with optical interferometer)



ISO/TC201 2015, Seattle Meeting of ISO/TC201/SC9 Main  
 Hilton Seattle Airport & Conference Center, Seattle, Washington, USA, Oct. 15, 2015  
 NWIP(2.1222) accepted & New WG established in TC201/SC9

Brief summary of NWIs

## Report on "Guideline for the determination of elastic modulus for compliant materials using atomic force microscope"

Ken Nakajima

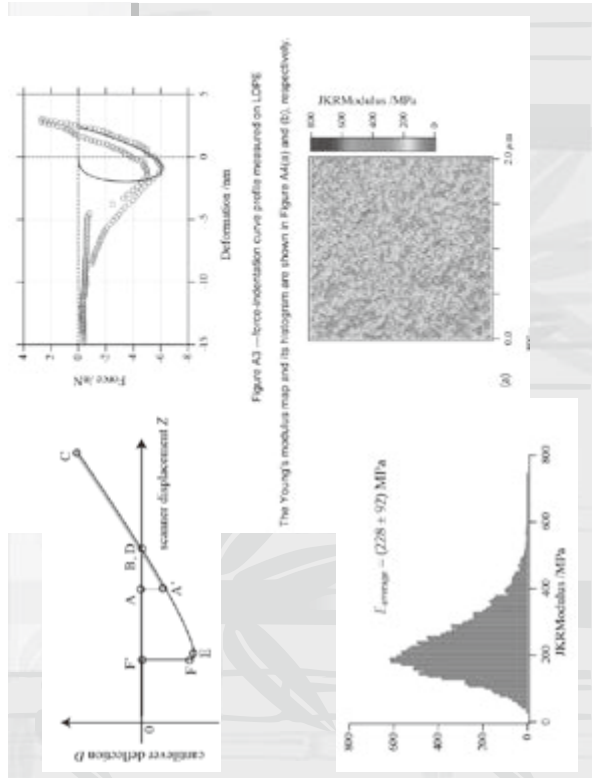
Tokyo Institute of Technology, Japan

## Activity Updated

- ▶ 29/11/2012 Project approved and assigned as TWA2/A16
- ▶ 06/09/2014 VAMAS TWA2 Meeting @Berlin, Germany
- ▶ DD/MM/2016 Activity Report in VAMAS TWA2 Annual Review Report
- ▶ 31/08/2015 Form 4 and Working Draft submitted to CAG
- ▶ 15/10/2015 Resolution 6 for WG7 establishment stated (Seattle Mtg)
- ▶ 02/02/2016 Voting of Resolution 6 closed
- ▶ XX/XX/2016 Circulation of Committee Draft for ballot

未決

Bruker and Oxford have already implemented  
 JKR offline analysis in their latest software.



## Plan for VAMAS-TWA2 RRT

### "AFM Nano-scale roughness measurement" Plan to initiate VAMAS-TWA2 project by Dec. 2016

1. Background noise
  - Roughness on Si(100) at 0 nm field of view
2. Scanner distortion errors
  - Wide field of view (2µm, 20µm, 80µm) on flat Si(100) (or SiC)
3. Probe tip effect (Probe conversion filter)
  - Image of certain film at 2µm field of view
  - Tip shape measurement (PA01 + Blind reconstruction)

\* Plan to test 2 different cantilever

## ISO/TC201/SC9 Report for new working item

Dopant / carrier concentration and detection limit of Electric SPM (SSRM and SCM)



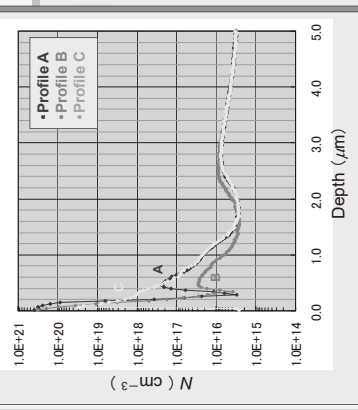
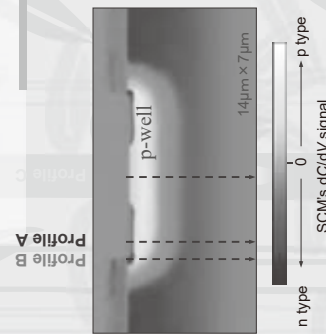
Takaya Fujita, Mr.  
NISSAN ARC, Ltd., Yokosuka, Japan (JISC)

Hiroshi Itoh, Dr.  
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, Japan (JISC)



31

## Carrier profiling using SCM



Values of carrier concentration  $N$  can be calculated from the signals using an experimental calibration curve<sup>1)</sup>. Depth profiles show their gradient of  $N$  in p-well and reveal difference between the edge and body.

[1] Takaya Fujita, Koji Matsumura, Hiroshi Itoh and Daisuke Fujita, Meas. Sci. Technol., 25 (2014) 044021.

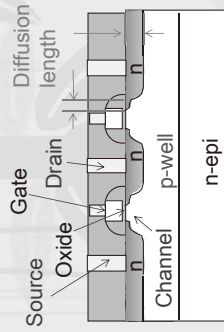
30

## Why has ESPM been used?

Dopant ions such as boron, phosphorus or arsenic are generally used for dopant atoms that can create charge carriers (holes and electrons) in silicon devices.

Ion implantation and diffusion process after annealing in the source, drain and channel has been developed and applied for manufacturing LSI circuits.

However, heat history differed from each equipment, characterizing two-dimensional diffusion length in the actual devices has become important issues for research, development, quality control and failure analysis.



Schematic of a cross section of the metal-oxide-semiconductor field-effect transistor (MOSFET).

32

## Timeline

1. Proposal of New Working Item to ISO/TC201/SC9  
November, 2009 at San Francisco, USA
2. Results of Preliminary Survey to ISO/TC201/SC9  
September, 2010 at Beijing, China  
September, 2011 at Brescia, Italy
3. Results of Domestic Round Robin Test to ISO/TC201/SC9  
October, 2012 at Tampa, USA
4. Circulating instruction for Int'l RRT under VAMAS TWA2  
November, 2013 at Naha, Japan
5. Reporting Results of RRT to ISO/TC201/SC9  
September, 2014 at Berlin, Germany, 2016 at Seoul
6. Submitting Form4 with WD to ISO/TC201/SC9 ~~by January~~ in December, 2017. (TRを予定)

— ナノ物性計測の標準化にむけて —

2004~  
用語  
データフォーマット

ISO 28600 (データフォーマット)  
ISO 18115-2 (用語集)

英国S博士  
分解能  
機器の校正

Language is power!

2008~  
分解能  
機器の校正

ISO 27911 (NSOM分解能)  
ISO 13083 (E-SPM分解能)  
ISO 11039 (ドリフト)  
ISO 11952 (SPM校正)  
ISO 13095 (探針形状)  
ISO 11775 (ばね定数)

将来展望  
2015~  
ナノ物性測定法  
物性量の校正法

E-SPM校正、機械物性、SPMラフネス、NSOM、STM

-> ナノ材料、ナノデバイス、ライフサイエンス.....

AFM Nano-scale roughness measurement

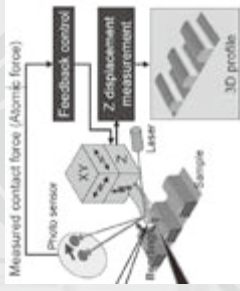
【ターゲット】 ナノ表面研磨や微細化構造の進展が著しい半導体分野など

【目的】 ナノスケールの定量評価方法(ナノ粒子径、ナノスケールのラフネス)の開発と国際標準化

を目指す。

【効果】 日本の走査プローブ顕微鏡計測産業の技術競争力の強化とユーザーの利便性の向上

走査プローブ顕微鏡計測産業の国際標準化



1. ノイズノイズ

• Roughness on Si(100) at 0nm field of view

2. スキャナーのZ方向の弓形(お椀型)歪み

• Wide field of view (2 μm, 20 μm, 80 μm) on flat Si(100) (or SiC)

3. 探針形状効果

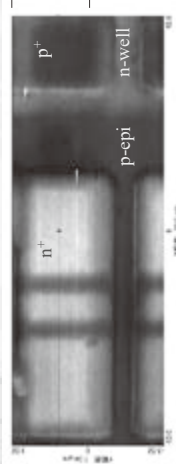
• Image of certain film at 2 μm field of view  
• Tip shape measurement (PAOI + Blind reconstruction)

VAMASで上記3つの取り扱いに関する取扱い・ガイドライン化

KPFMのキャリブレーション

FM-KPFM for static random access memory sample

Cantilever : SCM-PIT



Carrier Density [ /cm <sup>2</sup> ]	Potential [mV]
n <sup>+</sup> 2 × 10 <sup>20</sup>	400
n-well 2 × 10 <sup>17</sup>	140
p-epi 2 × 10 <sup>16</sup>	-150
p <sup>+</sup> 4 × 10 <sup>19</sup>	-70

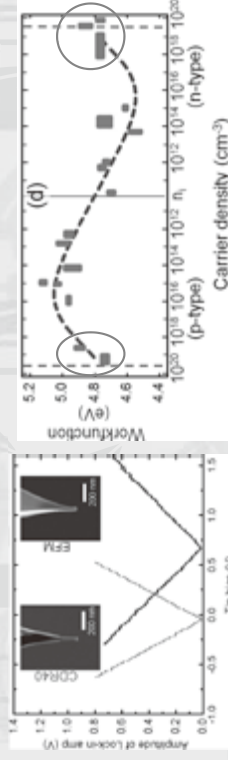
No quantitativity in p-type semiconductor of high dopant level

Introduction

KPFM for carrier density measurements (Previous study)

KPFM measures electrical properties near Fermi level

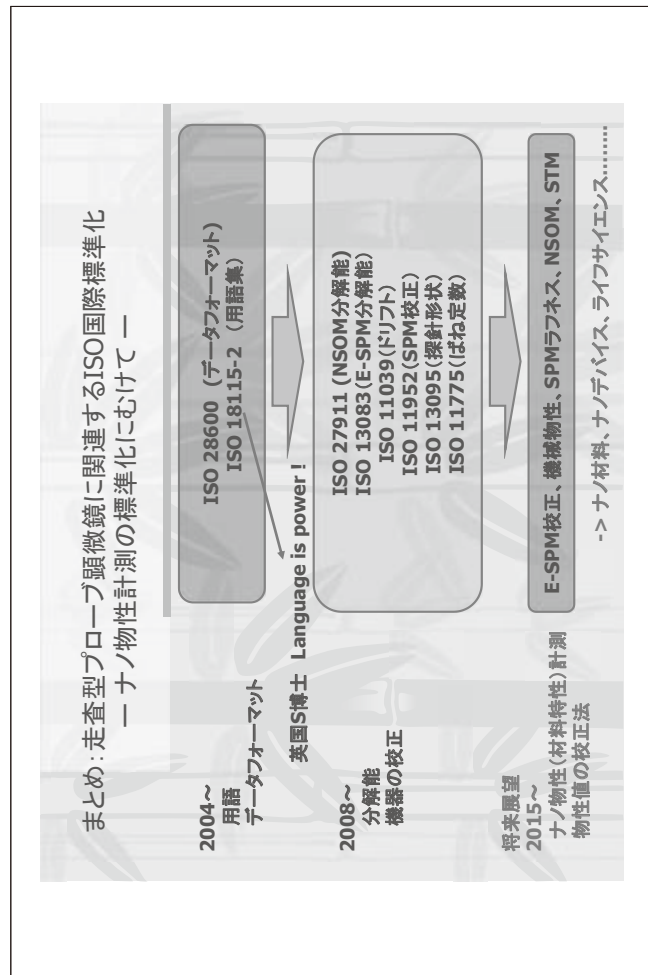
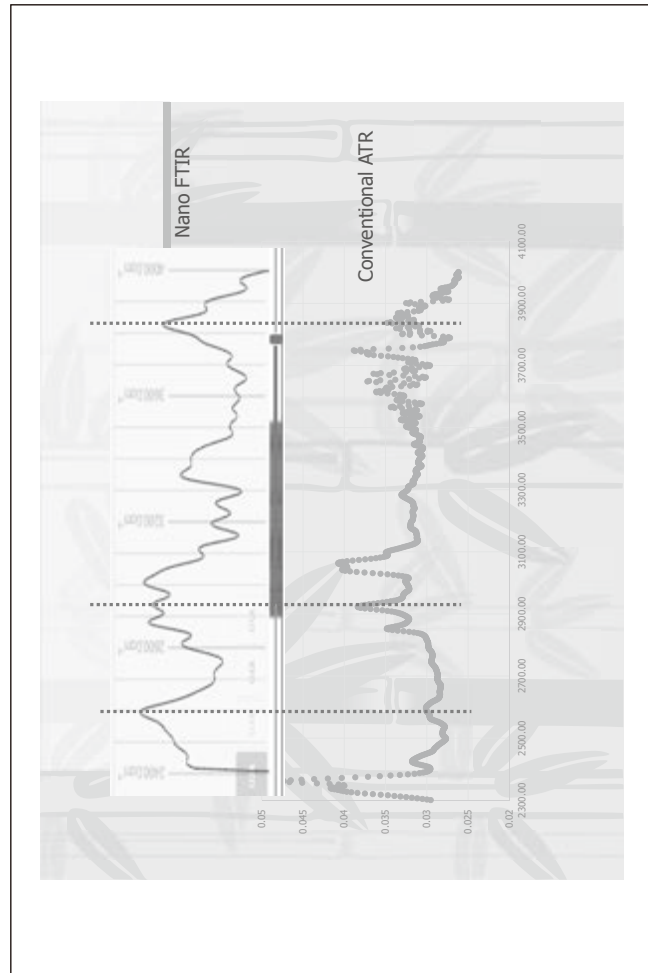
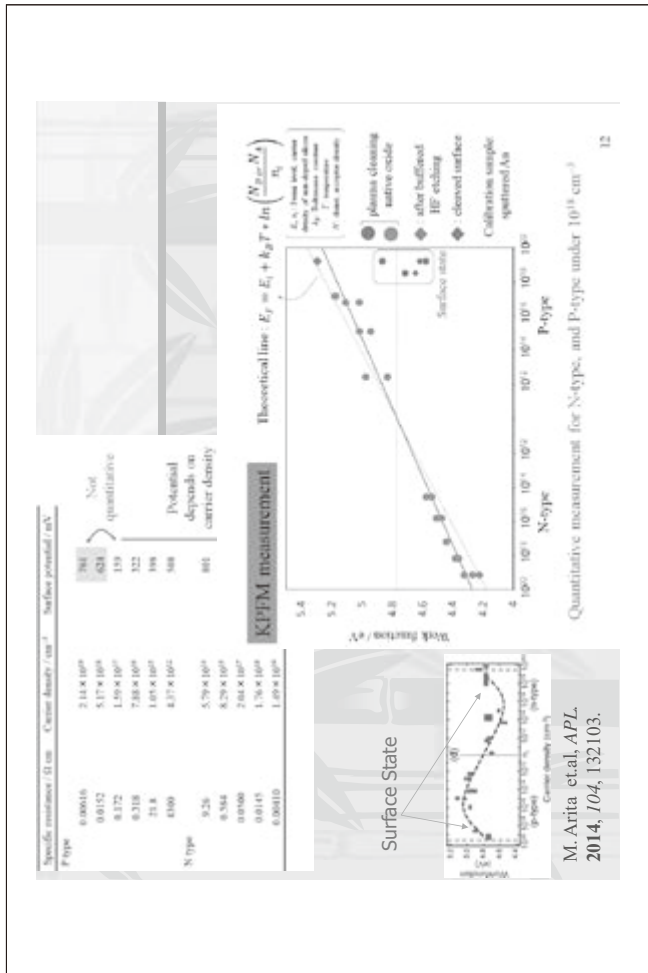
→ apply to quantitative measurement of carrier density



Surface state and band bending, in high dopant level

M. Arita, K. Torigeo, T. Yamatechi, T. Nagatoka, T. Aiso, Y. Yamashita, and T. Morooka, *Appl. Phys. Lett.* **2014**, *104*, 132103.





## まとめ

-ISO TC201 SC9の規格を紹介

分析の規格 → 標準分析方法の確立

AFMはまだ未成熟？

- ①弾性率・電気測定規格が審議中
- ②ナノ粒子・ナノラフネス が準備中
- ③将来 KPFMや分光測定などの定量評価法

謝辞

METI 工業標準化推進事業委託費

「走査型プローブ顕微鏡法による定量的な材料ナノ計測に関する国際標準化」



# 超高温域の炭素系材料の物性計測とその結果の分析

非破壊計測研究グループ 岩下 哲雄

## 要旨

これまでに 2000 °C を超える高温環境下での機械的強度や電気抵抗などの物理特性を計測する装置を開発し、様々な人造グラファイト材料の高温での温度依存性を評価してきた。ここでは、著者自身が開発した超高温域まで電気抵抗と熱膨張などを計測する装置の開発と得られた試験データの分析結果を紹介する。

## 1. はじめに

「超高温」とは、元素がプラズマ状態である数億や数兆°C という定義もある。これは、物質の極限状態の「超高温」を意味する。ただし、既存材料の使用環境における極限という観点から考慮すると、対象とする材料の種類によって「超高温」の範囲は異なる。例えば、プラスチックに代表される有機材料の場合、500 °C でも超高温環境と云える。この報告でとりあげる「超高温」は、発電用タービンや航空機エンジンに使用されているニッケル基合金の使用温度を超えるおよそ 1500 °C 以上の温度領域とする。このような超高温域を必要とする工業は実在する。例えば、鉄鋼、アルミニウムに代表される金属精錬および半導体シリコン結晶成長、人造サファイヤやシリコンカーバイド、人造ダイヤモンドなど無機材料の製造がそれに相当する。これらの工業では、代表的な工業用炭素材料のひとつである人造グラファイト材料を利用する。この報告では、人造グラファイト材料の高温物性を計測する技術の開発と得られた計測データの分析結果を紹介する。

## 2. 計測する物性

人造グラファイト材料の業界ではユーザーの要求を取り入れて行くために独自のファクター、熱ストレス抵抗 (*TSR*) を考案した。それは、以下の式で表現される。

$$TSR = \frac{TC \cdot FS}{CTE \cdot YM \cdot ER} \quad (1)$$

ここで、*TC* : 熱伝導率、*FS* : 曲げ強度、*CTE* : 熱膨張係数、*YM* : ヤング率、そして *ER* : 電気抵抗率である。この熱ストレス抵抗は、数値が大きいほど高温での耐久性が良いとされ、人造グラファイト材料の業界メーカーでは、この数値を上げるための努力がなされてきた。この熱ストレス抵抗の計算に使用される数値は、常温での計測値であるが、これら物性値の使用環境である高温域までの変化が重要であることが理解される。

産業技術総合研究所の前身のひとつである大阪工業技術試験所の炭素材料研究室ではこれまでに、2000 °C を超える高温下での機械的強度や熱拡散率などの物理特性を計測する装置を試作・開発し、さまざまな人造グラファイト材料の高温での特性の温度依存性を評価してきた<sup>1</sup>。さらに、著者は、超高温電気抵抗測定装置、超高温熱膨張計測装置を開発

して、熱ストレス抵抗の5種類の物性パラメータをすべて計測できるようになった。

この報告では、工業用炭素系材料の関連企業の協力を得て、様々な人造グラファイト材料の高温での電気抵抗測定、熱膨張計測および高温引張試験を行って得られた試験データの温度依存性を分析した結果を紹介する。

## 2. 1. 電気抵抗

超高温域まで物理特性を計測するために使用するジグは、すべて人造グラファイトで構成できるように設計した。電気抵抗の測定には、定電流四端子法が超高温用電気炉中で実行できるように考案した。この測定装置から得られた各種の炭素材料の抵抗率の温度依存性を図1に示す。図中の Glassy Carbon は、ガラス状炭素、Iso-Graphite：等方性グラファイト材料、そして、POLE：電炉用的人造グラファイト電極である。炭素材料の電気抵抗は、常温からある任意の温度まで小さくなるが、Iso-Graphite および POLE の人造グラファイト材料の場合、その挙動は任意の温度で反転して、温度上昇とともに抵抗値が大きくなる。このことは、常温から数百°Cの温度域の計測結果から 1500 °C以上の高温抵抗値を推定することが困難であることを意味する。

人造グラファイト材料のこのような複雑な電気抵抗の温度依存性は、グラファイトの結晶性および炭素六角網面の配向現象から分析されている<sup>2</sup>。常温付近における温度上昇にともなう抵抗値の低下は、熱励起による電導キャリア ( $\pi$  電子) の増加に起因する。他方、さらなる高温域の温度上昇にともなう抵抗値の上昇は、炭素六角網面の格子振動による電導キャリアの散乱による影響と推察されている。これらの挙動からグラファイトは「半金属」と呼ばれる所以である。もう一つの Glassy Carbon ガラス状炭素は、グラファイト結晶が発達し難い炭素材料 (ハードカーボン) の典型であり、半導体的性質を示す。

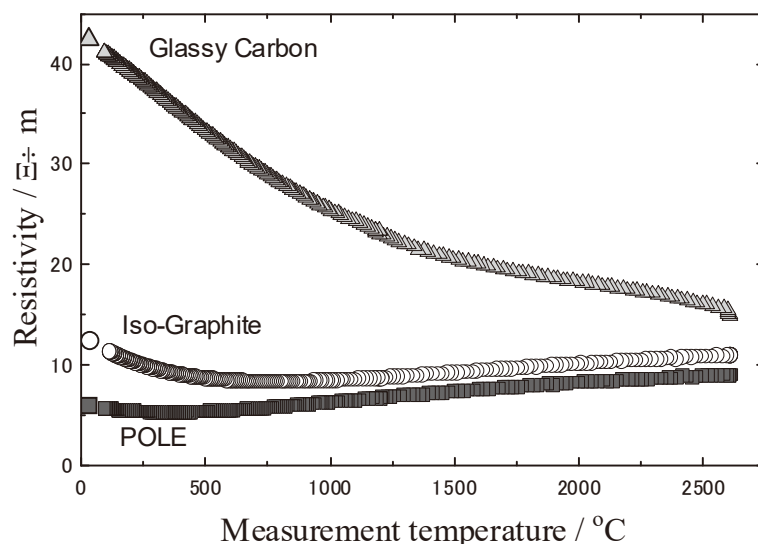


図1. 各種カーボン材料の電気抵抗率の温度依存性

## 2. 2. 熱膨張

高温での耐火物などの熱膨張を試験する方法は、JIS R2207「耐火物の熱膨張の試験方法」

で規格化されている。この規格には、熱機械分析装置 (Thermal Mechanical Analysis, TMA) に代表される接触法とレーザー光走査型寸法測定器を用いた非接触法の両方が記載されている。著者は、発熱体および計測ジグだけでなく、参照物質にも高密度等方性グラファイトを用いた超高温用の熱膨張計測装置を開発した<sup>3</sup>。この装置はまた、接触法と非接触法が同時に計測できる設計としたところに特徴がある<sup>4</sup>。

図2に開発した装置を用いて計測した人造グラファイト材料の熱膨張係数(Coefficient of Thermal Expansion, CTE)の温度依存性を示す。図中の Iso-Graphite は、等方性グラファイト材料、そして、比較材料として電炉用人造グラファイト電極を機械的につなぐためのニップル電極材の押出成形方向と平行 (Parallel) と垂直方向 (Vertical) にサンプリングした試験片である。

等方性グラファイト材料 Iso-Graphite の熱膨張係数の温度依存性は、400 °Cを境に、それ以下とそれ以上の温度では挙動が異なる。同様に押出成形方向と平行にサンプリングした Parallel もまた、400 °C以下と以上の温度では挙動が異なっている。むしろ、Parallel の場合、400 °C以下の温度帯で熱膨張係数が負の値になっており、この温度帯では温度上昇によって収縮が起きていることを示している。実際に、炭素六角網面の面内の理論的熱膨張は400 °C付近まで負であることが知られており<sup>5</sup>、押出成形方向に炭素六角網面を強く配向させているニップル電極の Parallel では妥当な挙動が得られていると分析している。

炭素材料の熱膨張の温度依存性もまた、常温から数百°Cの挙動を延長して、高温域を推察することが難しいことを、この結果は示唆している。

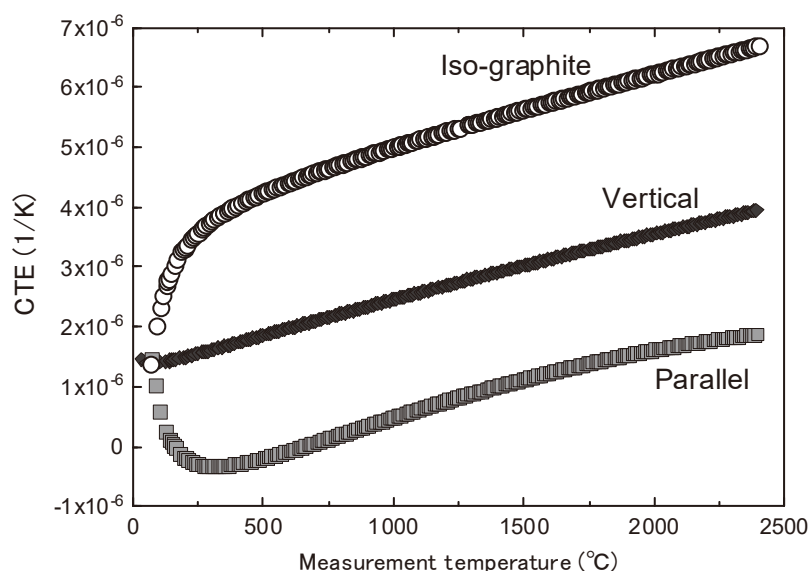


図2. 各種カーボン材料の熱膨張係数の温度依存性

### 2. 3. 高温引張試験

人造グラファイト材料は、高温域になると機械的強度が増強することが知られている。等方性グラファイト材料の常温から 2600 °Cまでの引張試験における荷重-変位曲線を図3に示す。ガラスやセラミックスと同じように脆性材料である人造グラファイトは、常温

では弾性変形の限界に到達する前に破断する。破断する荷重から算出される引張強度は、試験温度が高くなると増加していることが図3からも伺える。さらに高温にシフトしてグラファイトの Debye 温度およそ 2200 °Cを超えると、金属材料のように塑性変形を示すようになり、破断するまでの変形量が著しく大きくなる。室温での試験と比較すると、試験温度 2600 °Cでは、変形量は6倍、引張強度はおよそ2倍程度に相当する。

このように人造グラファイト材料は、高温で機械的強度が増加するので、局部加熱による強度試験を行うと、温度の高い部分ではなく、比較的温度の低い部分が破壊するので、正しい高温強度が得られない。そこで、炭素材料の材料試験は、試験片だけでなくジグ部分も加熱する必要がある。これは、人造グラファイト材料の高温での機械特性試験の困難さを示唆している<sup>6</sup>。

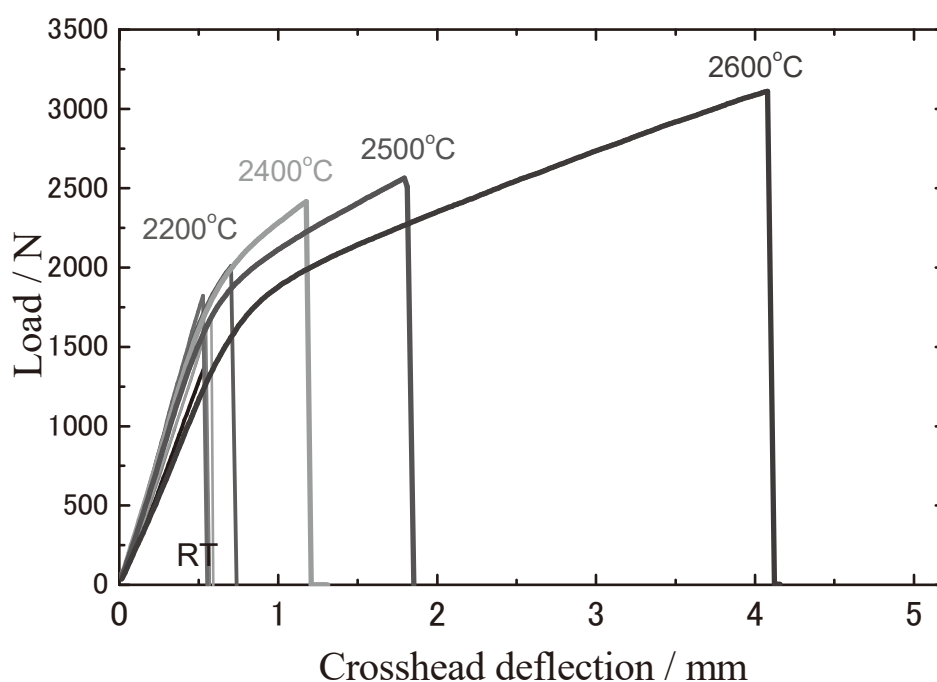


図3. 等方性グラファイト材料の高温引張試験の荷重－変位曲線

人造グラファイト材料が高温になると機械的強度が増強するメカニズムは、Mrozowski が 1950 年代に提唱した説が一般的である<sup>7</sup>。それは、人造グラファイト材料が 3000 °C付近の熱処理プロセスによってグラファイト結晶化と体積収縮が生じて、その後常温まで冷却されるため試料内部には非常に多くのマイクロクラックが存在し、そのマイクロクラックが再加熱の熱膨張によって閉じるために、高温で強度や弾性率が高くなるという説である。

2200 °C超の高温域では塑性変形を示すので、等方性グラファイト材料の超高温引張クリープ試験を行うことが可能である。超高温域で塑性変形が顕著に観察される応力レベルは、常温では破断している値に達するため、高温引張クリープ試験を実施する温度し、目的の応力レベルを負荷するなどの試験上の工夫を行っている。

高温による強度の増加および超高温引張クリープ挙動は、先の電気抵抗率、熱膨張率と

同様に、人造グラファイト材料の調製条件に影響を受ける。これら調製条件の影響を調査するために、人造グラファイト材料に関連する業界との共同研究・受託研究を展開している。

### 3. まとめ

材料設計や工業プロセスの最適化のために、計算機支援工学 (computer aided engineering, CAE) 技術が活用される時代となった昨今、各種物性のデータは、非常に重要であることは言うまでもない。高温を利用する工業プロセスにおいては、使用する材料の高温での物性変化を計測し、さらに、高温物性の温度依存性やその調製条件の影響を評価・分析する重要性がとて増している。ここで紹介した 超高温域の炭素系材料の物性計測技術の開発とその試験データの分析結果が工業プロセスの最適化など人造グラファイト材料に関連した産業への技術革新に役立てば幸甚である。

<sup>1</sup> 官民連帯共同研究報告書「炭素および炭素ハイブリッド複合材料の物理特性の評価・向上に関する研究」, 大阪工業技術試験所(1992).

<sup>2</sup> N. Iwashita, H. Imagawa and W. Nishiumi, *CARBON*, **61** 602-608 (2013).

<sup>3</sup> 岩下哲雄, *炭素*, [No.268] 135-137 (2015).

<sup>4</sup> 「約 2400 °Cまで熱膨張を正確に計測できる装置を開発」, 2013 年 11 月 25 日 プレス発表

<sup>5</sup> W.C. Morgan, *Carbon*, **10** 73-79 (1972).

<sup>6</sup> 岩下哲雄, *材料試験技術*, **55** 76-80 (2011).

<sup>7</sup> S. Mrozowski, *Proceedings of First and Second Conference of Carbon* (1956) p.195, The Waverly Press, New York.



## 超高温域の炭素系材料の物性計測とその結果の分析

- ① 高温電気抵抗
- ② 高温熱膨張計測
- ③ 超高温引張クランプ試験

産業技術総合研究所  
計量標準総合センター  
分析計測標準研究部門  
非破壊計測研究グループ

岩下 哲雄  
(いわした のりお)

JASIS2018 コンフアレンス  
分析計測標準研究部門  
第4回シンポジウム  
2018年9月7日：第2張メッセ

## 電炉製鋼



電氣を用いて鉄スクラップを溶解し、建設現場で使われるH型鋼や棒鋼などを生産する**電氣製鋼炉**、略して**電炉**。その名の通り、電氣の熱を利用して鋼を製造する方法。電氣炉の形は蓋のついた大きな鍋のようなもので、その蓋には**グラファイト(黒鉛)**でできた太い電極が垂直にさし込まれている。これに電流を通すと、鍋の中の鉄スクラップと電極との間にアーク(気体中での放電の一種)が発生し、このアーク熱で約1600°Cに達し、鉄スクラップが溶かされる。

You tube より

## 人造グラファイト(黒鉛) 材料

コークスなどのファイラー(骨材)とコaltarルピッチなどのバインダー(粘結材)を混合し、成形、焼成、黒鉛化および機械加工を行ったブロック状の製品。

人造グラファイト材料の具体的な応用は、製鋼用黒鉛電極、アルミ精錬用やその他電解炉用黒鉛電極、放電加工用電極、シリコン半導体や光ファイバーなどの製造用ジグ、リチウムイオン二次電池の負極用黒鉛粉まであらゆるところで使われている。

これら工業用カーボン製品の生産量は、**130万トン/年**程度とされている。(これは、PAN系炭素繊維の年間生産量の10倍以上に相当する。)

- 黒田, 炭素, No.221, 61-86 (2006)
- 東條, 炭素, No.234, 234-243 (2008)
- 室伏, 炭素, No.248, 105-111 (2011)



電炉での黒鉛電極  
(日本カーボン社HPより)

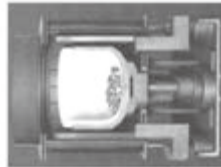
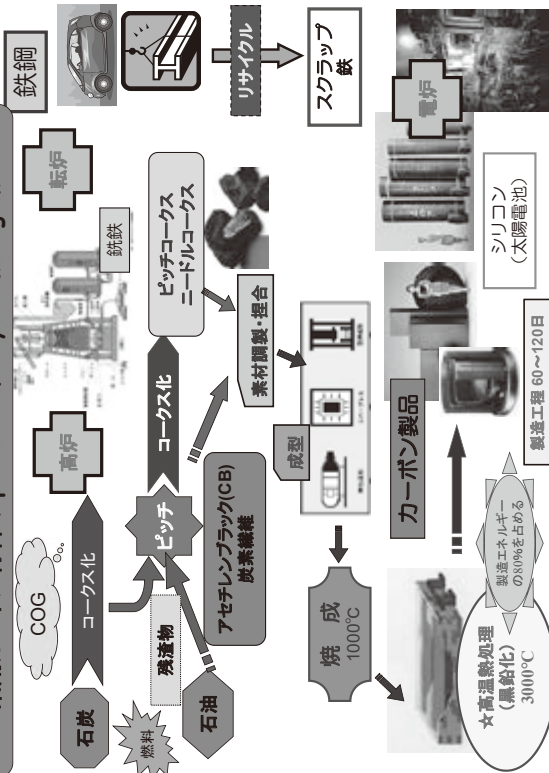


写真2 東産炭シリコン社製放電用黒鉛電極

## 工業用カーボン材料の product life cycle management



### 工業用カーボン材料 (Classical carbon)

第一世代	木炭, 鉄鋼用コークス カーボンブラック	5000万トン/年
第二世代	グラファイト材料 人造黒鉛電極	100万トン/年
第三世代	炭素繊維	5万トン/年
第四世代	ナノカーボン	数トン/年

#### 工業用カーボン材料メーカー:

- ・東海カーボン
- ・新日本テクノカーボン
- ・東洋炭素
- ・日本カーボン
- ・イビデン
- ・昭和電工
- ・SECカーボン

(2006年度: 1400億円の売り上げ) 炭素協会調べ

- ・ SGL Carbon (独)
  - ・ Graftec UCAR (米)
  - ・ Le Carbon (仏)
  - ・ IBUCC
- ※世界市場規模: 2兆円 (2010年統計)

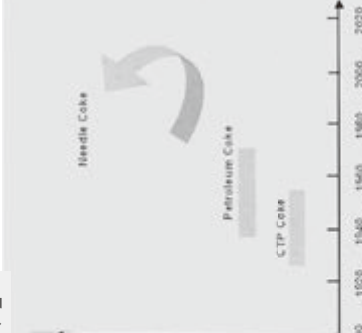
### 【熱ストレス抵抗 (TSR)】

Thermal Stress Resistance:

$$TSR = \frac{TC \cdot FS}{CTE \cdot YM \cdot ER}$$

- TC: Thermal Conductivity
- FS: Flexural strength
- CTE: Coefficient of thermal expansion
- YM: Young's Modulus
- ER: Electrical Resistivity

Fig. 9 Steps in raw material based graphite electrode quality expressed by thermal stress resistance



TRS: one of the measure for graphite materials applied at high temperature.

6

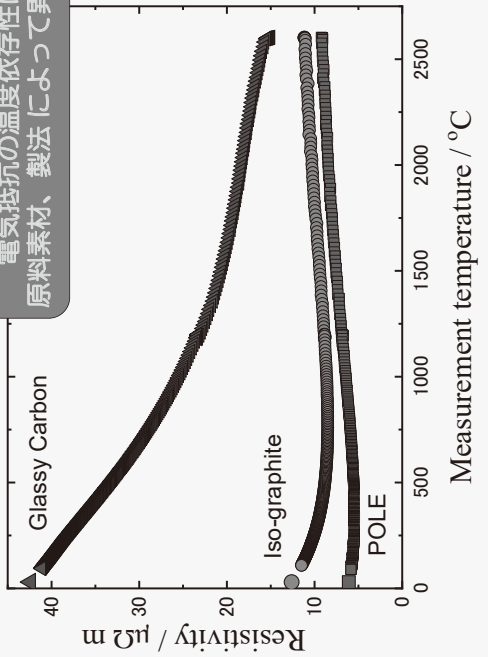
SGL-carbon presented in Carbon2007

AIST

### ① 高温電気抵抗

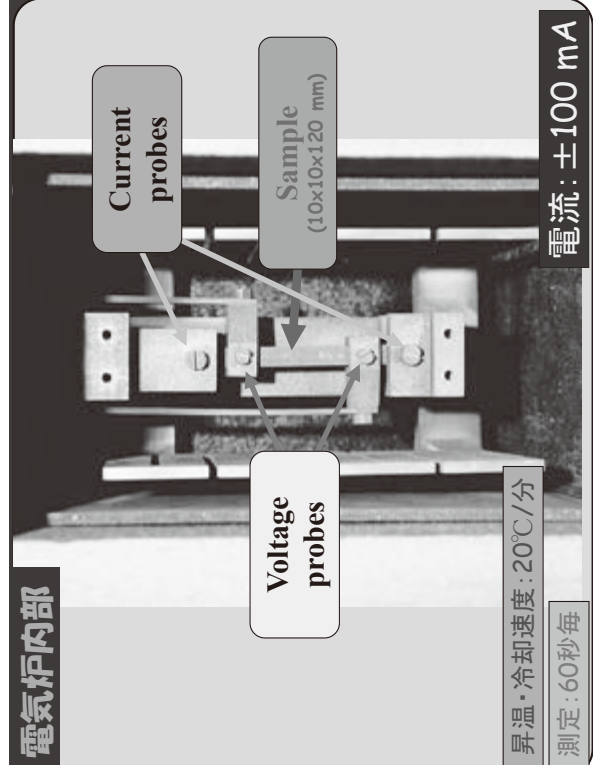
NIMU 分析計測標準研究室

カーボン材料の  
電気抵抗の温度依存性は  
原料素材、製法によって異なる



7

### 電気炉内部

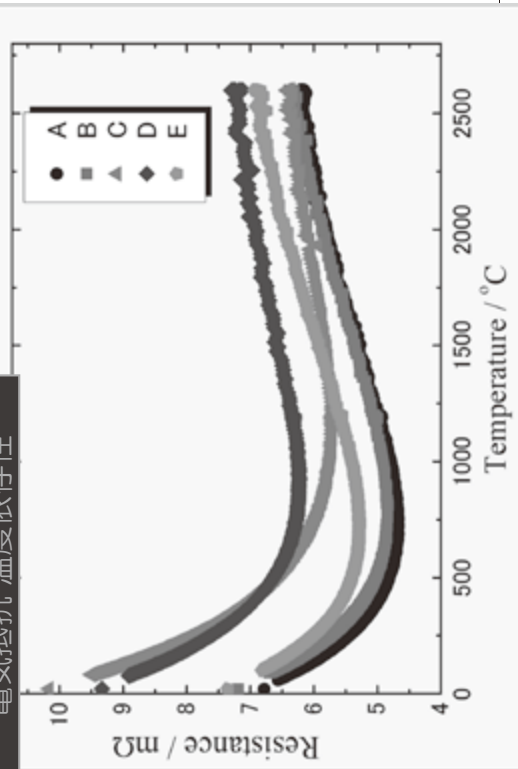


昇温・冷却速度: 20°C/分

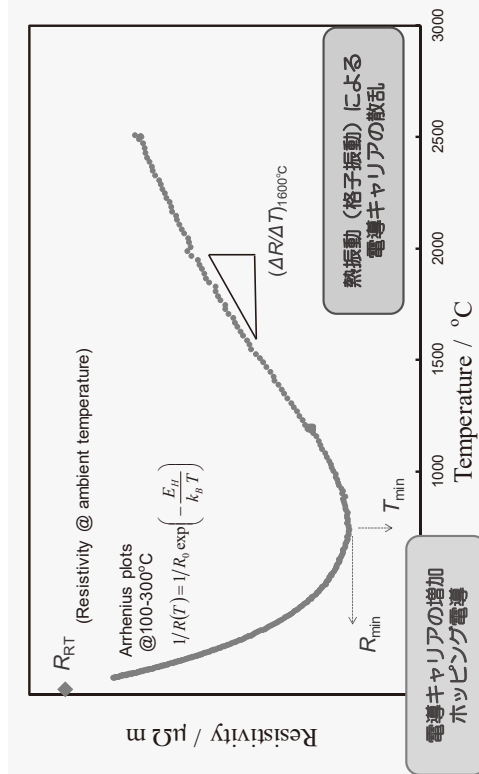
測定: 60秒毎

電流: ±100 mA

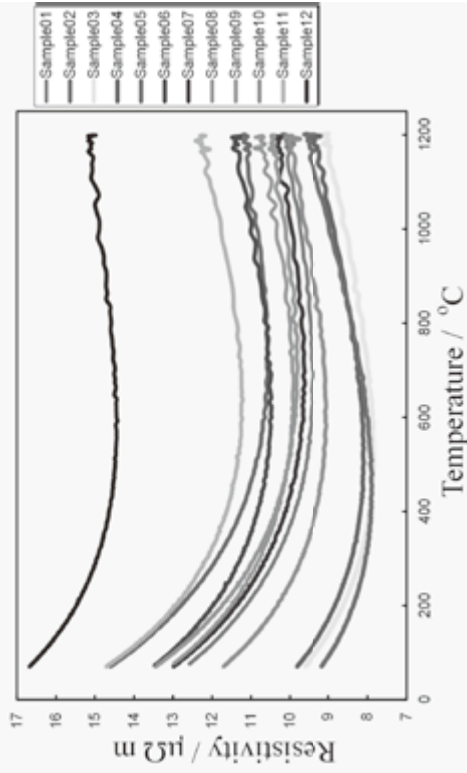
【等方性グラファイト】  
電気抵抗 温度依存性



【分析】 等方性グラファイトの電気抵抗の温度依存性

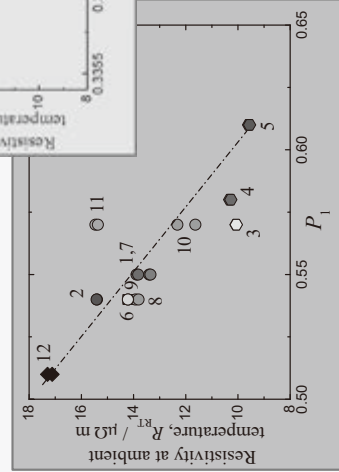


押し出し成形グラファイトブロック (12種類)

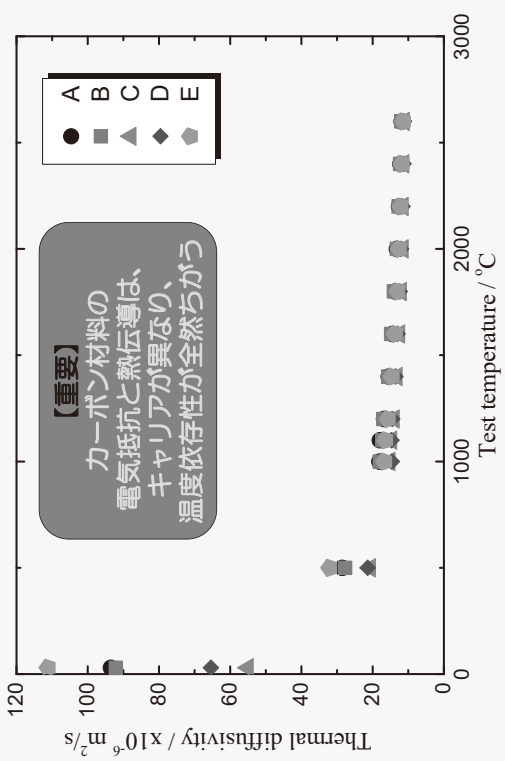


押し出し成形グラファイトブロック (12種類)

常温抵抗率と  
結晶構造パラメータ



【熱拡散率 温度依存性】



② 高温熱膨張計測

2013年11月25日 産業技術総合研究所 フリス発表

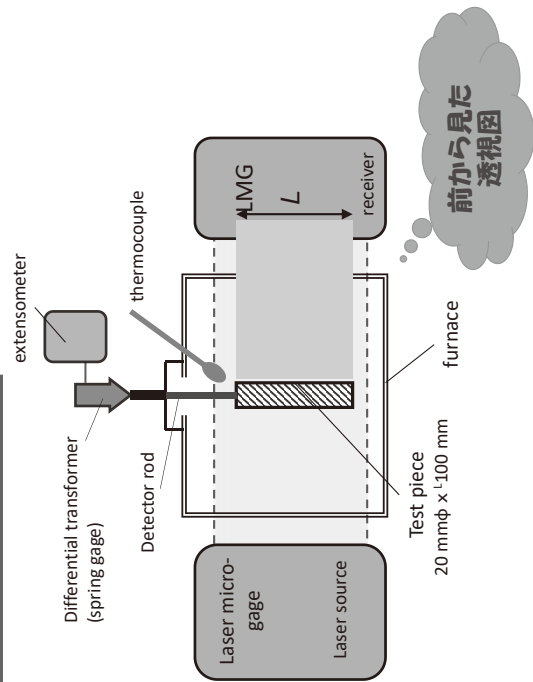
**ポイント**

- ・大径ステンレス鋼などの工業用カーボン材料の熱膨張は400℃まで正確に計測可能で、従来のレーザー干渉計よりも広い温度範囲で計測可能。
- ・測定精度が従来のレーザー干渉計よりも約10%向上。
- ・100℃以下の材料の熱膨張率を測定する高精度の装置が完成。

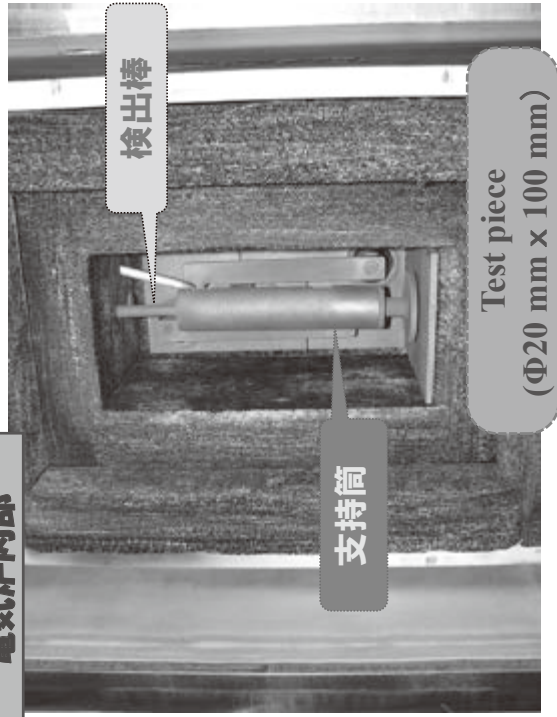
**概要**

産総研の炭素材料研究センター(理事長 中島 良治)は、カーボン材料の熱膨張率を400℃まで正確に計測する装置を開発し、産業技術総合研究所(理事長 津田 恵子)と共同で、2400℃までの超高温域で測定可能な工業用カーボン材料の熱膨張率を計測できる装置を開発した。

Measurement System



電気炉内部



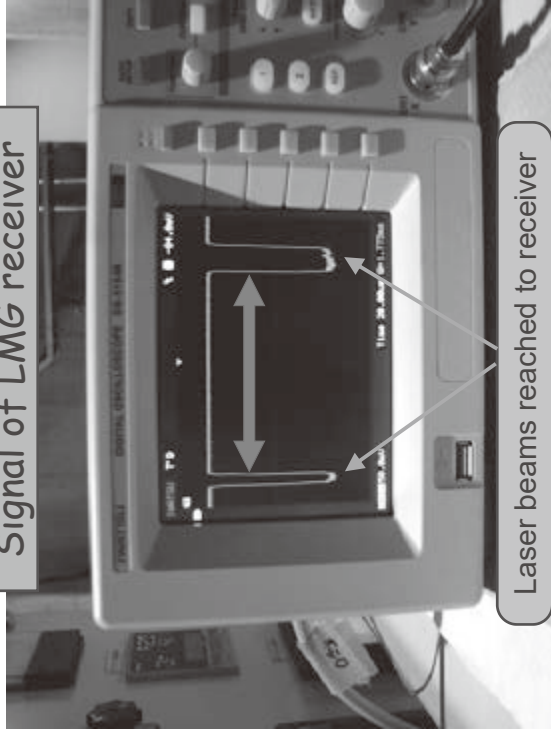
レーザー光線 & 支持筒

test piece

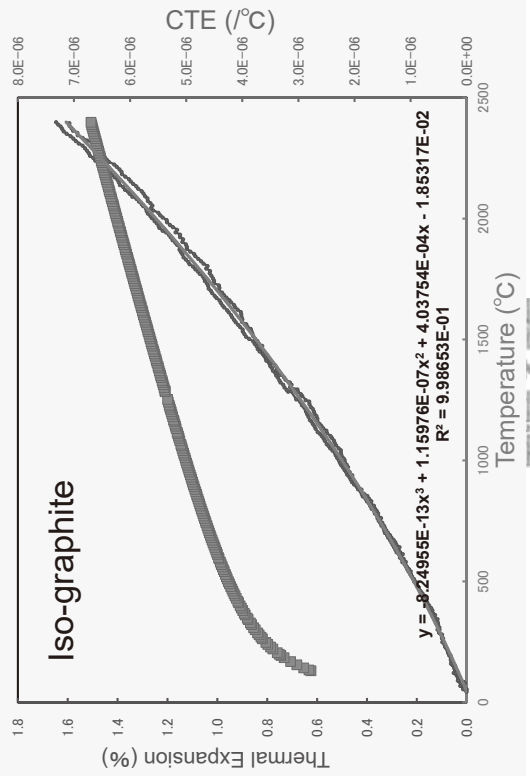
断熱材のスリット

Laser beam

スリット



寸法変化の測定 by LMG



AIST

NMIJ 分析計測標準研究部門

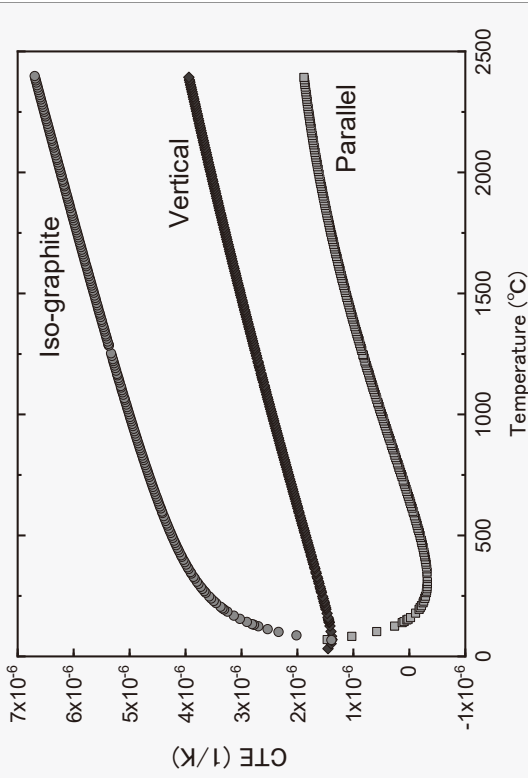
Material

1. 等方性グラファイト(Iso-graphite) via cold isostatic pressing mold
2. ニップル電極(Nipple electrode) made from needle-coke, sampling from parallel and/or vertical to press direction

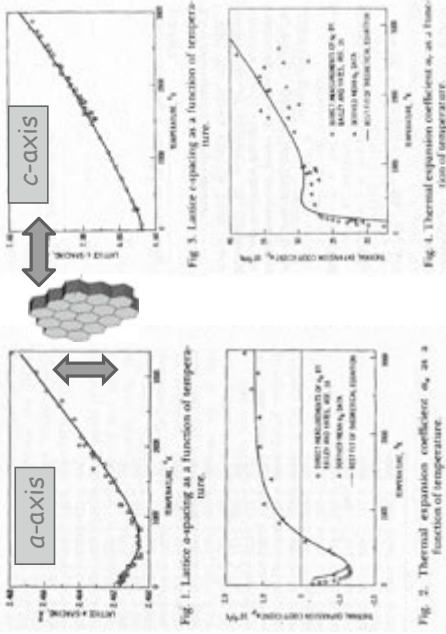




熱膨張係数 (CTE) の温度依存性



【分析】CTE vs. temperature of Graphite crystal



W.C. Morgan, "Thermal Expansion Coefficient of Graphite Crystals", Carbon, 10 (1972) 73-79.

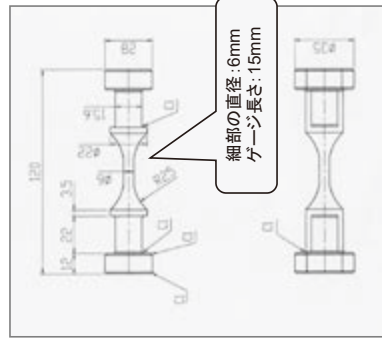
③ 高温引張クリープ試験

超高温炉が付属したインストロン型  
万能材料試験機

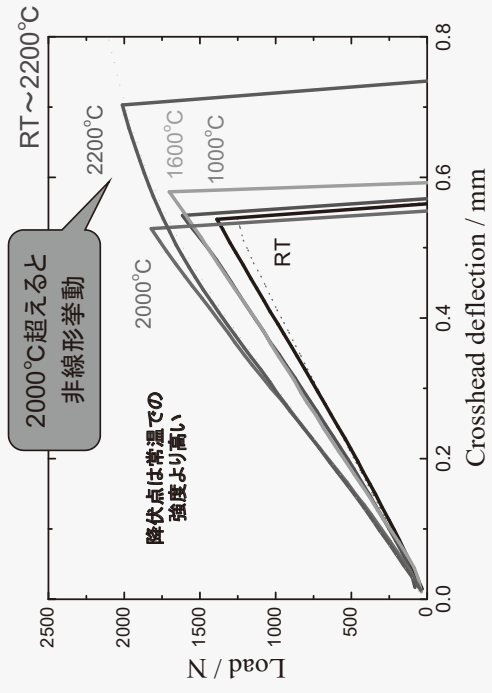


1988年 (S63)  
官民連帯共同研究  
(大阪工業技術試験所)

試験片形状

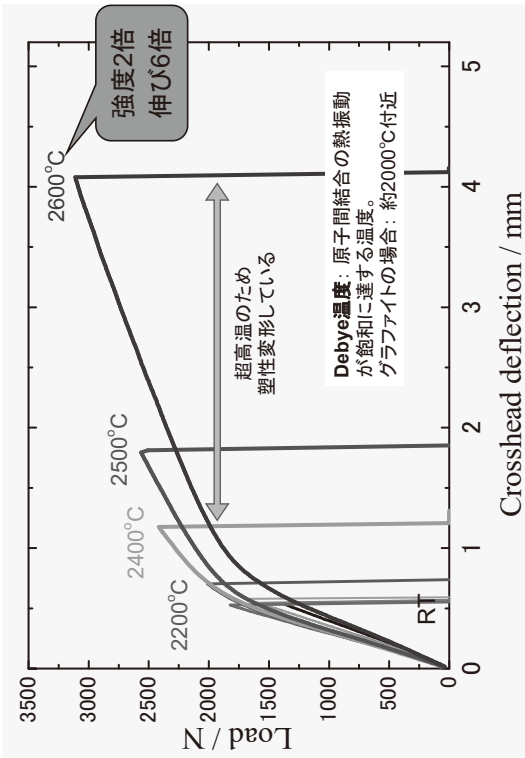


Iso-graphite 【引張試験・荷重-変位曲線】



## Iso-graphite : 【引張試験】

RT~2600°C



高温で強度が高くなるとい  
都合の良い  
特性！

- スポット加熱試験のように  
試験片に温度勾配が存在すると・・・  
最高温度より比較的低温の部分が壊れる

3000°C付近の黒鉛化プロセスによって 結晶化・体積収縮が生じて、  
その後 常温まで冷却されるため試験内部にはマイクロクラックが存在  
する。

そのマイクロクラックが 再加熱の熱膨張によって 閉じるために 高温  
で強度や弾性率が高くなるという説が一般的

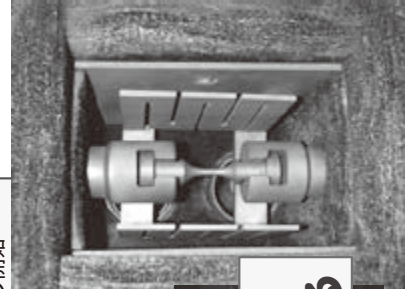
- S. Mrozowski, *Proceedings of First and Second Conference of Carbon* (1956) p.195, The Waverly Press, New York
- J.F. Andrew and S. Sato, "Study of Young's Modulus of Carbon at High Temperature", *Carbon*, 1 (1964) 225

## 試験方法

- ① 電気炉内を真空脱気して、アルゴンガス置換する。
- ② 昇温中 膨張による試験片や治具へのダメージを防ぐために、98Nの引張荷重を負荷しながら 温度上昇させる。
- ③ 目的の温度で15分以上保持してから、引張試験の開始  
⇒ クロスヘッドスピード：0.5mm/分

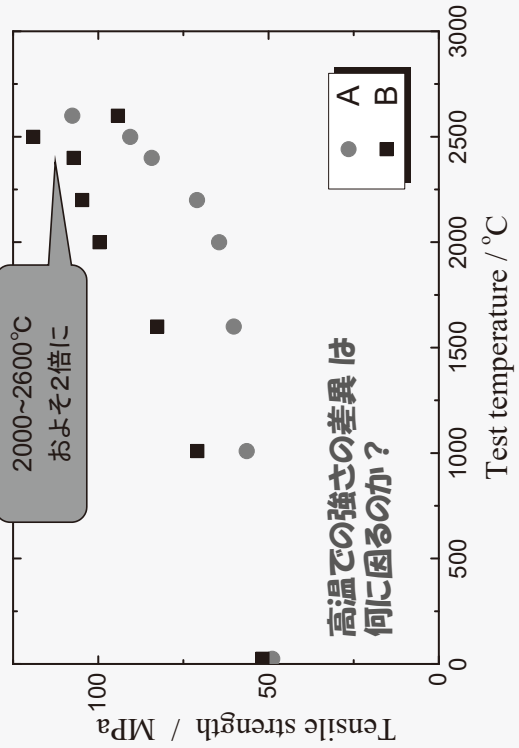
変位は、クロスヘッドの移動量を計測し、  
室温での試験片細部の直径から断面積を計算し、  
引張強度を得た。

室温の試験  
でさえも



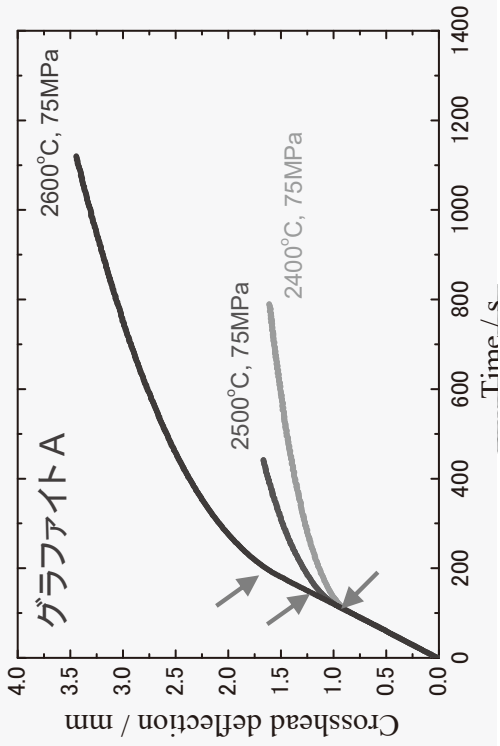
計測試験方法にも  
ノウハウ・経験則がある

## 引張強さの温度依存性



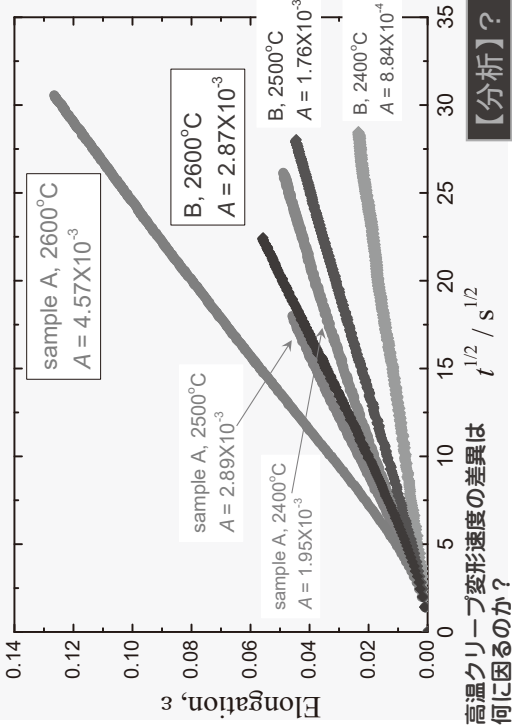
高温クリープ試験  
Creep test

目的の試験温度にて、目的の荷重を一度に負荷できない  
そこで試験機のクロスヘッドの移動させて、目的の荷重に  
なったところ(矢印)をクリープテストの開始点とした



Creep curves

Elongation  $\epsilon$  -  $t^{1/2}$  plots



まとめ

- CAEモデリングが活用される時代
- ◆ 工業用カーボン材料の応用分野でも  
熱管理などの工程最適化のため

実験・計測の重要性

物性の温度依存性の支配因子を探る  
〔分析〕

- ◆ 工業用カーボン材料の製造過程における物性変化  
の計測・分析が課題

# ポスター発表





# 医用超音波機器の安全性評価に資する 高出力超音波パワー標準開発の必要性

音響超音波標準研究グループ 内田 武吉、吉岡 正裕、堀内 竜三

## 要旨

産業技術総合研究所は、超音波治療機器などで使用されている高出力超音波に対応した超音波パワー標準の整備を行っている。我々は、2014年度から、カロリメトリ法を用いて15 W～100 Wの校正範囲で超音波パワー標準の供給を開始した。また、今後200 Wまでの範囲拡張を予定している。本稿では、カロリメトリ法による高出力領域の超音波パワー標準の開発について報告する。

## 1. はじめに

医用分野における超音波は、画像情報を提供する診断の利用だけでなく、癌などを治療する役割も期待されつつある。例えば、実際に臨床で使用されている超音波治療機器に高密度集束超音波（HIFU）<sup>1</sup>や体外衝撃波結石破砕術（ESWL）<sup>2</sup>がある。HIFUは、体外から照射した超音波エネルギーをがん細胞に集め、熱で細胞を壊死させる治療方法である。ESWLは、高出力超音波を照射することで発生する衝撃波を利用して、腎結石や尿管結石を破砕する治療方法である。その他にも、超音波照射によりできた細胞の穿孔から抗がん剤などを導入させるソノポレーションなどが開発されつつある<sup>3</sup>。これらの治療機器は、生体に対して安全性を考慮する必要がある領域まで出力が向上していることが指摘されている。実際に、HIFUやESWLでは治療箇所以外の正常組織が損傷してしまったなどの報告があるため、これらの機器は高精度な制御の下で使用する必要がある。そのためには、超音波パワーの高精度な計測技術が必要であり、計測の信頼性を担保するための高出力領域に対応した超音波パワー計量標準が必要不可欠である。

## 2. 天秤法による超音波パワー測定の限界

天秤法は高精度な超音波パワー測定方法として広く用いられている<sup>4</sup>。天秤法の概略図を図1に示す。天秤法は、水中に置かれた受圧板に超音波を照射した際の受圧板の重量変化を電子天秤により測定し、超音波パワーを算出する方法である。受圧板には、吸収型と反射円錐型があり、主に測定精度に優れている吸収型が使用される。産業技術総合研究所（産総研）ではこの方法を用いて1 mW～15 Wの校正範囲で標準供給を行っている。

しかし天秤法による超音波パワーの測定範囲の高出力化には、受圧板に起因する限界がある。吸収型受圧板は、超音波吸収の大きいゴム系の材料を用い、入射した超音波エネルギーを内部で完全に吸収させることで超音波パワーを正確に測定できることが特徴である。その際、受圧板内部では超音波エネルギーがジュール熱に変わり発熱する。そのため、吸収型受圧板を用いて15 W以上の超音波パワー測定を実施した場合、高出力な超音波エ

エネルギーにより過度な発熱が起こり、材料の変性や熱膨張による損傷が発生する。一方、反射円錐型受圧板を使用した場合は、発熱に起因する問題は発生しないが、高出力超音波に付随して発生する音響流により受圧板が静止した状態を維持できなくなり、測定精度に大きな影響を及ぼす。これらの理由により、天秤法を高出力領域の超音波パワー測定に適用することは難しい。

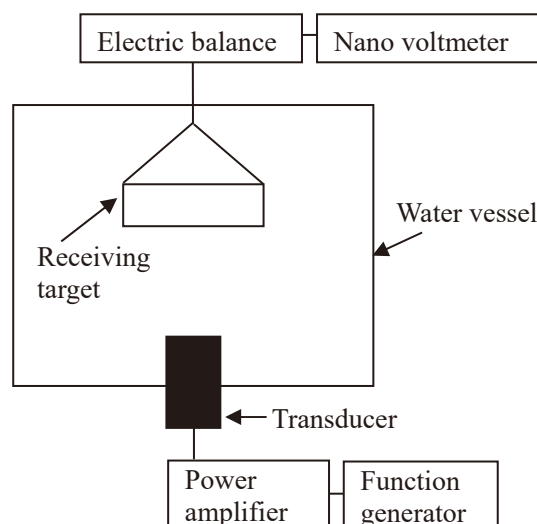


図1. 天秤法による超音波パワー計測装置の概略図

### 3. カロリメトリ法による高出力超音波パワー計測<sup>5</sup>

産総研では、天秤法に代わる測定方法として、水の温度上昇から超音波パワーを算出するカロリメトリ法を採用し、高出力領域の超音波パワー標準を整備した。カロリメトリ法に求められる条件として、1) 水に入射した超音波エネルギーがすべて水の温度上昇に寄与すること、2) 超音波振動子から放射された超音波が振動子に再入射しないこと、3) 超音波エネルギー以外の水に対する熱の出入りが無いことが挙げられる。我々は、これらの条件を満たす図2に示すようなカロリメトリ用水槽を製作した。この水槽は、内壁と外壁の間に厚さ 10 mm の空気層を設け、かつ内壁の厚さは超音波の波長に比べて無視できる 0.6 mm の薄いステンレス板で製作した。この構造により、水中に照射された超音波は壁面でほぼ全反射しながら円周上を伝搬し、最終的に超音波エネルギーのほぼすべてが水に吸収され水温上昇に寄与する。さらに、室温の影響を抑えるために、水槽全体を厚さ 40 mm のポリエチレン製断熱材で覆って測定を行う。理論上、室温と水温が 10 °C 異なっても、水温への影響は 0.01 °C 程度であり、これは超音波パワーに換算すると 0.05 W 程度であるためほぼ無視できる。超音波振動子は、アタッチメントを用いて水槽の壁面に振動子の照射面と水面が垂直になるように設置した。

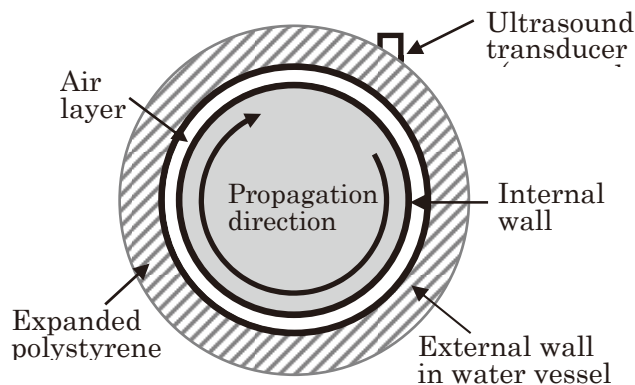


図 2. カロリメトリ用水槽

カロリメトリ法の測定において、水温の測定精度に大きく影響する問題として、viscous heating が挙げられる。Viscous heating は、温度センサと超音波照射により振動する水分子の摩擦によって発生し、超音波照射 ON 時に急峻な水温上昇が発生する現象である。この急峻な水温の上昇は、超音波エネルギーによる上昇ではないため、その影響を取り除く必要がある。そこで、我々は超音波照射前後の水温測定値から超音波パワーを算出する方法を採用している。水温の測定例を図 3 に示す。水温測定は、超音波照射前  $t_1$ 、超音波照射  $t_2$ 、超音波照射後  $t_3$  の 3 つの時間領域に分けて行う。 $t_1$  および  $t_3$  の水温変化を超音波照射時間の midpoint に外挿し、 $T_{\text{before}}$  と  $T_{\text{after}}$  を得る。両者の差を超音波照射の温度上昇と定義し超音波パワーを算出する。すなわち  $t_2$  を計算から除外することにより、viscous heating の影響を抑える。超音波パワー  $P$  は、

$$P = \frac{T_{\text{after}} - T_{\text{before}}}{t_2} \cdot C_p \cdot M$$

で算出される。 $C_p$  は水の比熱容量、 $M$  は水の質量を示す。

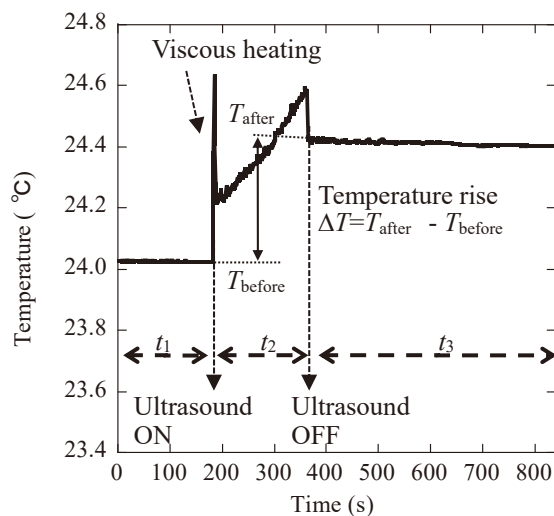


図 3. カロリメトリ法による水温測定の例

カロリメトリ法による超音波パワー測定の妥当性を評価するために、天秤法の測定値との比較を行った。測定範囲は、天秤法の測定限界を考慮して 10 W~15 W とした。また、カロリメトリ法による 100 W までの測定を行った。実験条件は、 $t_1$  は 180 s、 $t_2$  は 180 s、 $t_3$  は 480 s とした。駆動周波数 1 MHz の超音波振動子を用いて溶存酸素濃度 2 mg/l 以下の蒸留水に超音波を照射し水温を測定した。温度センサは、水槽内の温度勾配を考慮して、水槽の中心ならびに振動子の位置と対角線上の壁際の 2 か所に設置し、両者の平均値を水温上昇と定義した。実験結果を図 4 に示す。図 4(a) に示すように、カロリメトリ法と天秤法による測定値は、5 % 以内で一致することが確認できた。また、図 4(b) に示すように、カロリメトリ法により 100 W まで測定が可能であることが確認できた。これらの結果を受けて、我々は 2014 年度から 15 W~100 W までの校正範囲で高出力領域の超音波パワー標準を維持供給している。

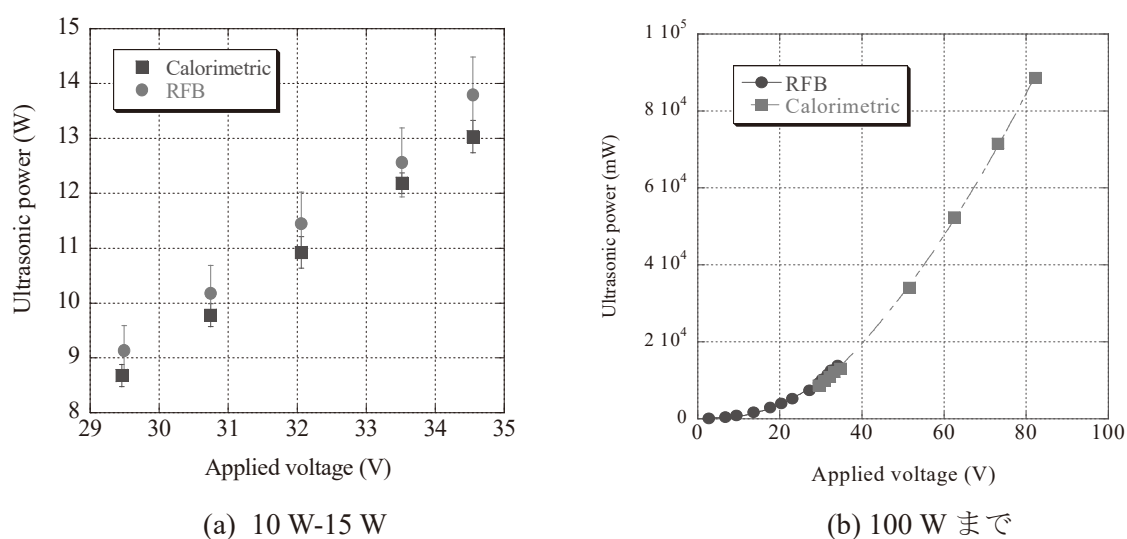


図 4. カロリメトリ法と天秤法による超音波パワー測定

#### 4. まとめ

水を発熱体とするカロリメトリ法による超音波パワー標準について紹介した。近年の超音波治療機器は、治療の効果を確実に得るために、より出力が増加する傾向にある。それに対応するために、産総研では超音波パワー標準の校正範囲を 200 W まで拡張する予定である。200 W までの拡張では、超音波振動子の自己発熱による水温上昇への影響が無視できなくなるため、今後この問題に取り組む予定である。

<sup>1</sup> 小野直, 日暮太郎, 川上正能, 中野まゆら, 内田豊明, *Jpn. J. Endourol*, 28, 224(2015).

<sup>2</sup> 篠原一彦, *医用治療機器学*, 医歯薬出版株式会社.

<sup>3</sup> Y. Ueno, S. Sonoda, R. Suzuki, M. Yokouchi, Y. Kawasoe, K. Tachibana, K. Maruyama, T. Sakamoto, S. Komiya, *Cancer Biol. Ther.* 15, 270(2011).

<sup>4</sup> IEC 61161 Ed. 3(2013).

<sup>5</sup> T. Uchida, M. Yoshioka, R. Horiuchi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 57, 07LC04-1(2018).

# 医用超音波機器の安全性評価に資する 高出力超音波パワー標準開発の必要性

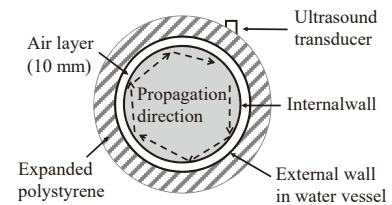
○内田武吉、吉岡正裕、堀内竜三 音響超音波標準研究グループ

## 1. 研究・開発の背景

がん治療を行うHIFUなどの超音波治療機器は、高出力な超音波を使用するため、生体への安全性が懸念されている。実際にHIFUによる治療では正常組織が損傷してしまったという報告もあるため、これらの装置を安全に使用するためには超音波パワー標準が必要不可欠である。

## 2. カロリメトリ法の校正装置

産総研は、高出力超音波に対応した超音波パワー標準をカロリメトリ法を用いて整備した。そのための装置としてカロリメトリ用水槽を製作した(図1)。この水槽は、内壁と外壁の間に空気層を設け、内壁の厚さは0.6 mmとした。照射された超音波は、中空層と極薄い内壁でほぼ全反射しながら円周上を伝搬し、最終的に水に吸収されるため、ほぼすべての超音波エネルギーが水温上昇に寄与する。また、断熱材で水槽全体を覆うことにより、室温の影響を抑えることができる。



(a) 模式図



(b) 試作した水槽

図1 カロリメトリ用水槽

## 3. 考察・議論

カロリメトリ法の妥当性評価のために、天秤法との比較を行った(図2)。その結果、天秤法と5%以内で一致し、100 Wまで超音波パワー測定が可能であることを確認した。このシステムにより、超音波パワーの精密測定が可能であることを確認した。

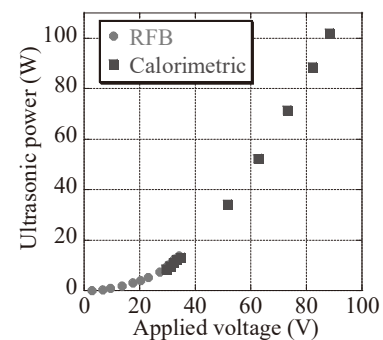


図2 カロリメトリ法と天秤法の比較

## 4. まとめと今後の展開

2014年度に、校正範囲15 W~100 Wの超音波パワー標準の供給を開始した。超音波治療機器は、治療の効果を確実にするために出力がさらに増加する傾向にある。そのため、今後産総研では200 Wまで供給範囲を拡張する予定である。



# 水晶体被ばく線量測定に用いる線量当量換算係数の決定と実用

放射線標準研究グループ 加藤 昌弘、黒澤 忠弘

## 要旨

水晶体被ばく線量の推定には3 mm 線量当量が用いられる。X線およびβ線の線量測定において標準的な照射場で与えられる空気カーマ及び70 μm 組織吸収線量から、3 mm 線量当量を導くための線量当量換算係数を計算および測定により求めた。線量当量換算係数は、単色エネルギーの場合と産業技術総合研究所において校正サービスを行っている場について導出した。

## 1. はじめに

水晶体等価線量の職業被ばく限度値は2011年に国際放射線防護委員会(ICRP)により引下げの声明があり<sup>1</sup>、国内規制に取り入れるための検討が行われている。信頼性の高い水晶体等価線量の管理を行うには国内における線量計の試験・校正システムの確立が欠かせない。本研究では試験や校正に用いるX線・β線照射場の水晶体等価線量評価に関わる実用量を導出することを目的とした。この成果により線量計を試験・校正できる環境の整備が期待できる。

現在の水晶体等価線量の限度値は、実効線量及び皮膚の等価線量の限度値に到達していない場合、限度値を超えることはほとんどないと言われている。そのため現在は放射線を伴う作業下で3 mm 線量当量の測定義務は課されていない。しかしながら限度値の引き下げをした場合はこの考え方による推定では不十分であると懸念される。そのため、水晶体等価線量についても、実効線量と皮膚の等価線量と同様に、等価線量のモニタリング方法や管理方法、防護の手段、また3 mm 線量当量を測定する場合はその測定方法を十分検討する必要がある。また、実用量の品質を保証するという観点から、3 mm 線量当量を測定する線量計の校正やトレーサビリティの確保が重要になると考えられる。

そこで本研究ではX線・β線場の水晶体等価線量評価に関わる実用量を導出する。これは標準として提供されている物理量（空気カーマまたは70 μm 組織吸収線量）から3 mm 線量当量を導出する換算係数を求めることによって実現する。これらの換算係数は測定で求められるβ線の直入射の場合を除き、モンテカルロシミュレーションによって求める。

本研究の成果は、水晶体等価線量計の試験・校正方法の標準化につながるとともに、国内団体・国際機関等からの評価・要望に耐える品質の水晶体等価線量評価システムの構築に貢献すると考えられる。

## 2. 線量当量換算係数

本研究で扱う3 mm 線量当量換算係数は以下のように定義される。

### 2. 1. 光子にかかわる線量当量換算係数

空気カーマから方向性線量当量  $H'(3;\Omega)$ 、入射角  $\alpha$  における ICRU スラブ中の深さ 3mm の線量当量  $H_{p,slab}(3;\alpha)$ 、入射角  $\alpha$  における円柱ファントム中の深さ 3 mm の線量当量  $H_{p,cyl}(3;\alpha)$  への換算係数は、それぞれ以下の式によって表す。

$$\begin{aligned} h'(3;\alpha) &= H'(3;\Omega)/K_{air} \\ h_{p,slab}(3;\alpha) &= H_{p,slab}(3;\alpha)/K_{air} \\ h_{p,cyl}(3;\alpha) &= H_{p,cyl}(3;\alpha)/K_{air} \end{aligned}$$

ここで、ICRU report 57 の記述<sup>2</sup>にならい、方向性線量当量の定義における特定の角度  $\Omega$  は規定方向に対する入射放射線の角度  $\alpha$  としている。

## 2. 2. 電子にかかわる線量当量換算係数

入射角 0 度における ICRU スラブ中の深さ 3 mm の線量当量  $H_{p,slab}(3;0^\circ)$  または方向性線量当量  $H'(3;\Omega)$  への、電子フルエンス  $\Phi_e$  からの換算係数は、それぞれ  $H_{p,slab}(3;0^\circ)/\Phi_e$ 、 $H'(3;\Omega)/\Phi_e$  と表す。また  $H'(3;\Omega)$ 、 $H'(0.07;\Omega)$  への  $H'(0.07;0^\circ)$  からの換算係数を以下の式で表す。

$$\begin{aligned} h'(3;\alpha) &= H'(3;\Omega)/H'(0.07;0^\circ) \\ h'(0.07;\alpha) &= H'(0.07;\Omega)/H'(0.07;0^\circ) \end{aligned}$$

## 3. 線量当量換算係数の導出方法

単色エネルギー X 線および単色エネルギー電子線の 3 mm 線量当量換算係数 ( $h'(3;\alpha)$ 、 $h_{p,slab}(3;\alpha)$ 、 $h_{p,cyl}(3;\alpha)$ 、 $H_{p,slab}(3;0^\circ)/\Phi_e$ 、 $H'(3;\Omega)/\Phi_e$ ) は EGS5-MPI コード<sup>3,4</sup> によるモンテカルロシミュレーションで計算した。計算のジオメトリとしては、ICRU 球・ICRU スラブまたは ICRU 組織から成る円柱ファントムを、真空中に設置した体系を扱った。単色 X 線の計算においてはカーマ近似の条件で計算を行った。入射粒子の数は、求める量の標準偏差が光子の場合 0.1 % 程度、電子の場合 0.5 % 程度になるように、計算の条件により変化させた。 $h'(3;0^\circ)$  は、スラブファントム相当のファントムを用いて、外挿電離箱により 70  $\mu\text{m}$  線量当量と 3 mm 線量当量を測定することにより求めた。 $h'(3;\Omega)$  と  $h'(0.07;\Omega)$  は、計算で得た線量当量に基づき、 $H'(3;\Omega)$  の  $H'(3;0^\circ)$  に対する相対値、 $H'(0.07;\Omega)$  の  $H'(0.07;0^\circ)$  に対する相対値からそれぞれ決定した。

## 4. 結果と考察

### 4. 1. 単色エネルギー X 線の 3 mm 線量当量換算係数

方向性線量当量と円柱ファントムに対する個人線量当量について、空気カーマから 3 mm 線量当量への換算係数の結果を図 1 に示す。他の研究結果とはおよそ 1 % 以内で一致した。また図 2 に、空気カーマから方向性線量当量と円柱ファントムおよびスラブファントムに対する個人線量当量へ換算係数を示す。入射角が 0 度の条件であっても、50 keV ~ 150 keV において、ファントムによる違いが最大 10 % 程度あることが分かる。

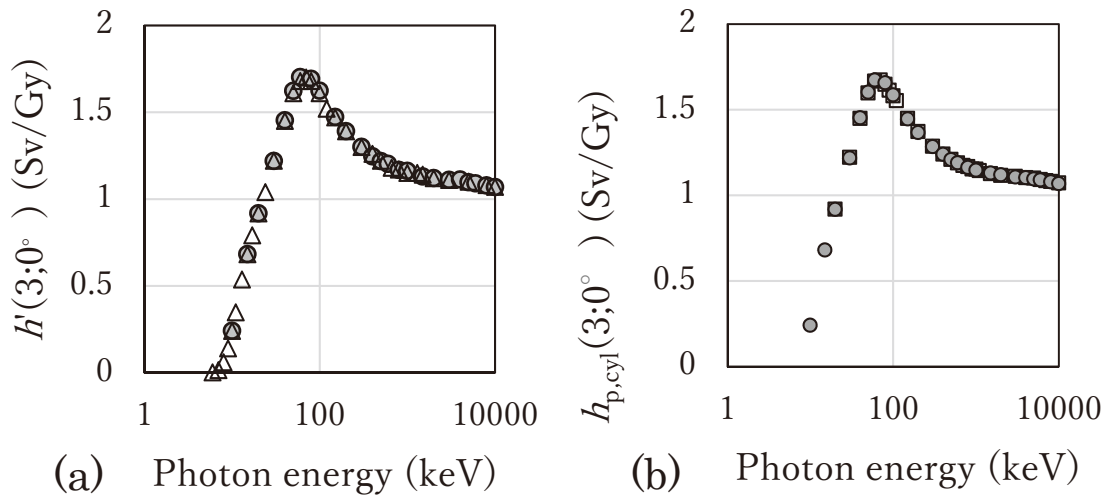


図 1. 空気カーマから 3 mm 線量当量への換算係数。入射角は 0 度である。

(a) 方向性線量当量への換算係数 ● : 本研究、△ : Behrens<sup>5</sup>

(b) 個人線量当量 (円柱ファントム) への換算係数 ● : 本研究、□ : Daures<sup>6</sup>

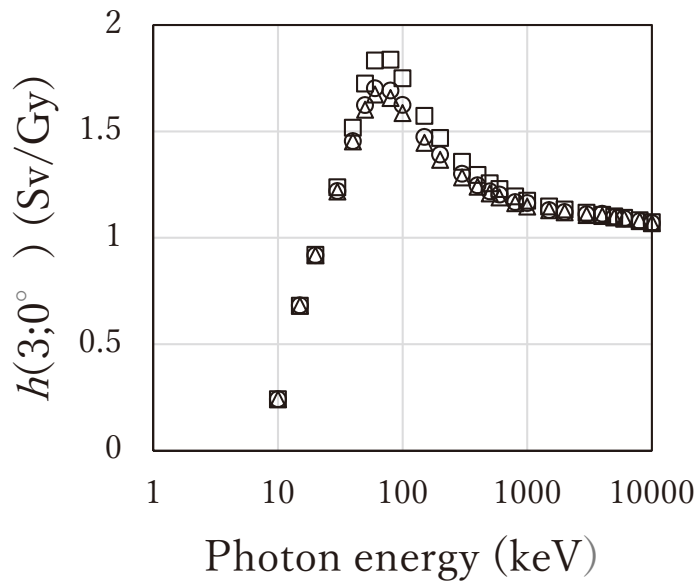


図 2. 空気カーマから 3 mm 個人線量当量への換算係数 (スラブファントム及び円柱ファントム) と 3 mm 方向性線量当量への換算係数の比較。入射角は 0 度である。  
□ : 個人線量当量 (スラブファントム)、△ : 個人線量当量 (円柱ファントム)、○ : 方向性線量当量

#### 4. 2. X 線照射場における 3 mm 線量当量換算係数

X 線照射場の換算係数は、単色エネルギーの換算係数を、照射場のエネルギースペクトルを考慮して加重平均を取ることで求めた。この成果により X 線場において 3 mm 線量当量の単位で校正や試験を実施することが可能となった。得られた換算係数の例として、N シリーズ照射場における入射角 0 度の場合の値を表 1 に示す。同一の指標の照射場の換算係数とは、80 kV 以上の管電圧では 2 % 以内で一致した。

表 1. X線標準場の 3 mm 線量当量換算係数

	実効エネルギー	円柱	球	スラブ	参考文献 <sup>7</sup> との差
N-300	253.36	1.317	1.338	1.403	0.5%以下
N-250	209.33	1.359	1.383	1.459	0.5%以下
N-200	165.13	1.415	1.441	1.532	0.5%以下
N-150	117.88	1.524	1.557	1.671	1%以下
N-120	100.63	1.582	1.619	1.743	1%以下
N-100	83.04	1.641	1.677	1.814	1%以下
N-80	64.15	1.669	1.700	1.831	2%以下
N-60	46.38	1.574	1.592	1.677	2%-3%
N-40	31.75	1.301	1.304	1.321	1%-2%
N-30	23.26	1.075	1.077	1.069	2%-3%

4. 3. 単色エネルギー電子線の 3 mm 線量当量換算係数

図 3 に、単色エネルギー電子線について計算した 3 mm 線量当量換算係数を示す。電子線については対象とするファントムによらず、換算係数に変化は見られなかった。

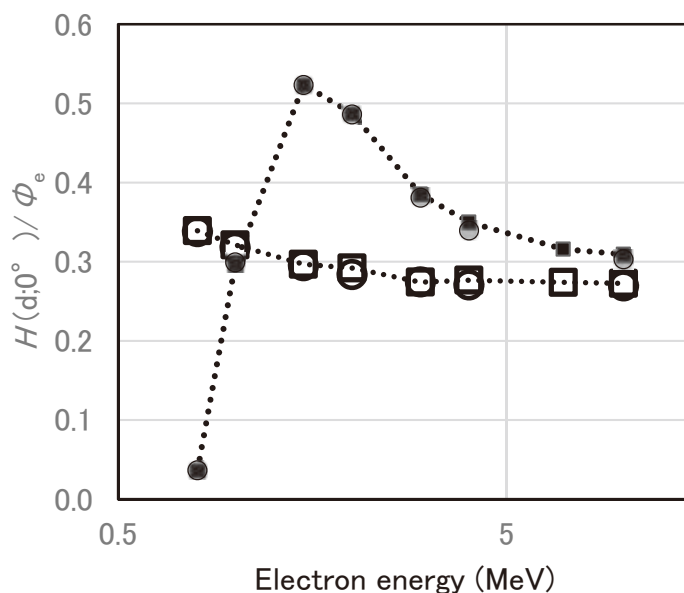


図 3. 電子フルエンスから個人線量当量への換算係数（スラブファントム）と方向性線量当量への換算係数の比較。入射角は 0 度である。□：70 μm 個人線量当量（スラブファントム）、○：70 μm 方向性線量当量、■：3 mm 個人線量当量（スラブファントム）、●：3 mm 方向性線量当量

#### 4. 4. Sr-90 $\beta$ 線場の 3 mm 線量当量換算係数

図 4 に Sr-90  $\beta$  線場における 3 mm 線量当量換算係数の入射角度特性を、70  $\mu\text{m}$  線量当量の換算係数とともに示す。同様の方法で設定した Sr-90  $\beta$  線場における換算係数と比較すると、本研究の値との差は最大で 5 % 程度であった。

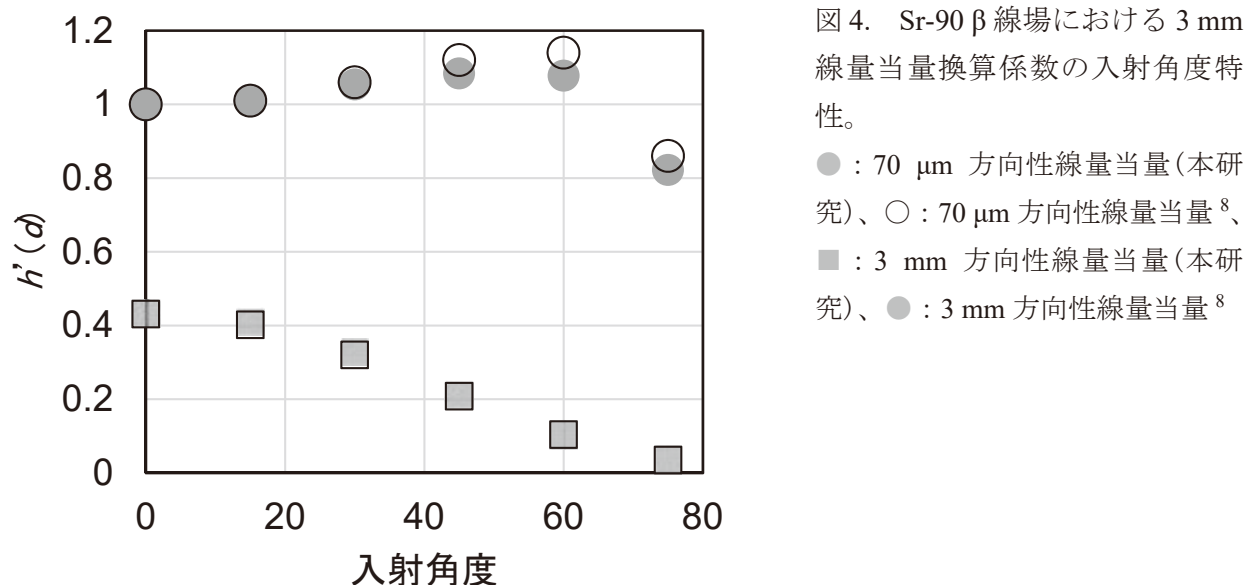


図 4. Sr-90  $\beta$  線場における 3 mm 線量当量換算係数の入射角度特性。

● : 70  $\mu\text{m}$  方向性線量当量 (本研究)、○ : 70  $\mu\text{m}$  方向性線量当量<sup>8</sup>、  
■ : 3 mm 方向性線量当量 (本研究)、● : 3 mm 方向性線量当量<sup>8</sup>

#### 5. まとめ

光子および電子の線量測定において標準場で与えられる空気カーマ及び 70  $\mu\text{m}$  組織吸収線量から、水晶体等価線量の推定に用いる 3 mm 線量当量を導くための線量当量換算係数を計算および測定により求めた。この成果により、産総研における照射場を水晶体被ばく線量測定用の線量計の開発や性能試験に活用できるものと期待できる。今後は  $\beta$  線照射場の種類を増やすことを検討している。

#### 謝辞

本研究の一部は平成 29 年度及び平成 30 年度放射線安全規制研究戦略的推進事業費（眼の水晶体等価線量評価に用いる線量計の試験校正手法の開発）事業によった。

<sup>1</sup> ICRP, ICRP Publication 118, Ann. ICRP, 41 (1/2) (2012).

<sup>2</sup> ICRU, ICRU Report 57 (1998).

<sup>3</sup> H. Hirayama et al, SLAC Report number: SLAC-R-730(2005).

<sup>4</sup> M. Shimizu, EGS5-MPI, <https://unit.aist.go.jp/rima/ioniz-rad/egs5mpi/index.html>

<sup>5</sup> R. Behrens, J. Radiological Protection **37** 354-378 (2017).

<sup>6</sup> J. Daures et al, Rapport CEA-R-6235 (2009).

<sup>7</sup> ISO, ISO/FDIS 4037-3:2018 (2018).

<sup>8</sup> R. Behrens, JINST 10 P03014 (2015).

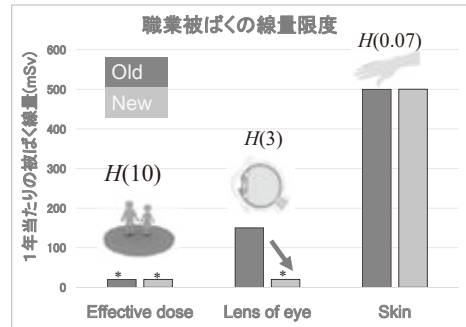


# 水晶体被ばく線量測定に用いる 線量当量換算係数の決定と実用

○加藤昌弘、黒澤忠弘 放射線標準研究グループ

## 1. 研究・開発の背景

国際放射線防護委員会による水晶体の被ばく線量限度引き下げの勧告があり、国内でも測定方法の研究・開発、評価方法の検討が盛んにおこなわれている。

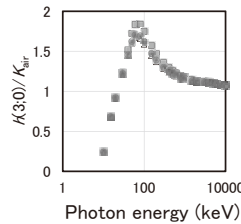


\*5年間にわたる平均で1年当たり20 mSv かつ1年で 50 mSvを越えない。

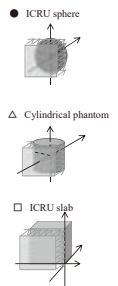
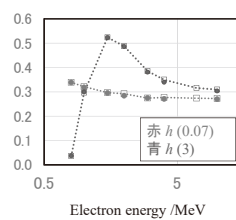
## 2. 研究・開発の内容

国家標準として供給しているX線空気カーマおよびβ線組織吸収線量と、水晶体被ばく線量測定に用いる3mm線量当量とを関係づける線量当量換算係数を計算および測定により導出した。さらに他の報告例と比較し、実用面において検討した。

光子の空気カーマ3mm線量当量換算係数



電子のフルエンス-線量当量換算係数



## 3. 考察・議論

単色エネルギーの光子・電子の換算係数において、ファントムの違いがどの程度現れるかを明らかにした。

同じ指標の場合における換算係数の違いは最大で5-6%程度である。

Nシリーズ X線標準場の3mm線量当量換算係数

	実効エネルギー	円柱	球	スラブ	ref*との差
N-300	253.36	1.317	1.338	1.403	0.5%以下
N-250	209.33	1.359	1.383	1.459	0.5%以下
N-200	165.13	1.415	1.441	1.532	0.5%以下
N-150	117.88	1.524	1.557	1.671	1%以下
N-120	100.63	1.582	1.619	1.743	1%以下
N-100	83.04	1.641	1.677	1.814	1%以下
N-80	64.15	1.669	1.700	1.831	2%以下
N-60	46.38	1.574	1.592	1.677	2%-3%
N-40	31.75	1.301	1.304	1.321	1%-2%
N-30	23.26	1.075	1.077	1.069	2%-3%

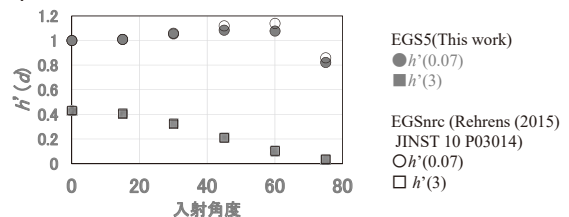
\*ISO 4037-3 (FDIS)

## 4. 結論および今後の展開

水晶体被ばく線量測定用の線量計の開発や性能試験に活用。  
…外部からの依頼にも対応。

今後はβ線場のエネルギーの種類を増やす計画。

Sr-90 β線場における線量当量換算係数の入射角度特性



本研究の一部は平成29年度及び平成30年度放射線安全規制研究戦略的推進事業費(眼の水晶体等価線量評価に用いる線量計の試験校正手法の開発)事業による。

URL: <http://unit.aist.go.jp/rima/>

# アラニン線量計を用いた医療用炭素線の線量測定技術

放射線標準研究グループ 山口 英俊、清水 森人、森下 雄一郎、加藤 昌弘  
黒澤 忠弘、田中 隆宏、齋藤 則夫

駒沢大学 平山 憲

量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所 坂間 誠、福村 明史

## 要旨

医療用炭素線は放射線治療で使用される放射線の一つであり、治療の安全性を担保するためにも品質保証システムの確立は重要である。医療用炭素線における第三者出力線量評価システムの構築に向けて、アラニン線量計を用いた線量測定技術を開発しており、その結果について報告する。

## 1. 研究の背景

放射線治療はがん治療の三大柱の一つとして広く普及しており、がん患者の三人に一人は放射線治療を受けていると言われている。非侵襲的に治療を行うことができる放射線治療は、臓器の機能や形態を保存できるという利点がある。その利点を最大限活かすために、狙った部分に局所的に放射線を照射し、正常細胞に照射される放射線の量はできるだけ抑えることが治療する上で重要となる。放射線治療の品質保証の方法の一つに、第三者による出力線量評価がある。これは、各施設が自身の治療装置を使って線量計に照射し、第三者が線量計の値を読み取って、照射された線量を報告するというものである。

外部放射線治療に使用されている放射線の種類は、X線、電子線、陽子線、炭素線などが挙げられる。陽子線や炭素線といった粒子線は、X線と異なり体内のより深い位置で局所的に多くの線量を付与するという特徴がある。このような特徴を生かして、骨軟部や頭頸部の腫瘍に対して多く治療が行われている。しかし、上で述べたような第三者による出力線量評価は、国内において行われていない。

現在産総研では、炭素線治療の出力線量評価システムの構築を目指し、アラニン線量計を用いた医療用炭素線の線量測定技術の開発を行っている。アラニン線量計は、キログレイレベルの大線量領域の線量測定のために開発されてきたものであるが、近年は放射線治療などのより低い線量を測定するための研究も行われている。本研究では、炭素線に対するアラニン線量計の応答を明らかにし、また、Co-60 $\gamma$ 線を基準としたときの炭素線に対する応答特性を評価した。

## 2. 研究方法

アラニンペレットは、市販のペレット (Harwell Dosimeter Ltd, ロット番号: AX584) を使用した。このロットのアラニンペレットの大きさは、公称値で直径 4.8 mm、高さ 2.7 mm であった。1 つのアラニン線量計の構成は、4 つのアラニンペレットを導電性ポリエーテルエーテルケトン (PEEK) 製の容器に入れたものとした。導電性 PEEK の容器は、直径

13.2 mm、高さ 22 mm とし、ペレットを入れるための直径 5 mm の窪みが空いているものを使用した。容器は蓋と本体に分けることができ、ペレットは容器の中に密閉されるような構造とした。

Co-60 $\gamma$  線の照射は、産総研の線源を用いて行われた (図 1(a))。Co-60 $\gamma$  線の水吸収線量測定の基本位置である水中 5 g cm<sup>-2</sup> の位置にて測定を行った。線源-検出器間距離は 100 cm とし、照射野は 11 cm とした。アラニン線量計に照射を行う前に、校正済みの電離箱線量計 (PTW, TN31013) を用いて基準深における線量率を決定した。アラニン線量計に照射された線量は、決定した線量率と、ユニバーサルカウンタによって測定された照射時間の積により導出した。アラニン線量計は、防水のために、導電性 PEEK 製の鞘に入れた状態で水ファントムに固定された。また、鞘の中の空隙を埋めるために、導電性 PEEK 製の棒を鞘の中に入れた。アラニン線量計には 10, 20, 30 Gy 照射を行い、各線量点で 3 つの線量計に照射を行った。

炭素線の照射は、放射線医学総合研究所の重粒子線治療がん治療装置 (Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba : HIMAC) の生物照射室にて行われた (図 1 (b))。290 MeV/u の炭素線を、リッジフィルターを用いて 6 cm の拡大ブラッグピークをもつビームに形成したものをを使用した。照射野は 10×10 cm<sup>2</sup> とした。実験時間が限られていたため、水等価深はレンジシフトを用いて調整し、空気中にアラニン線量計を固定して照射を行った。レンジシフトはアラニン線量計が SOBP (拡大ブラッグピーク) 中心に位置するように調整された。アラニン線量計への照射の前に、校正された電離箱線量計 (PTW, TN30013) に照射を行い、

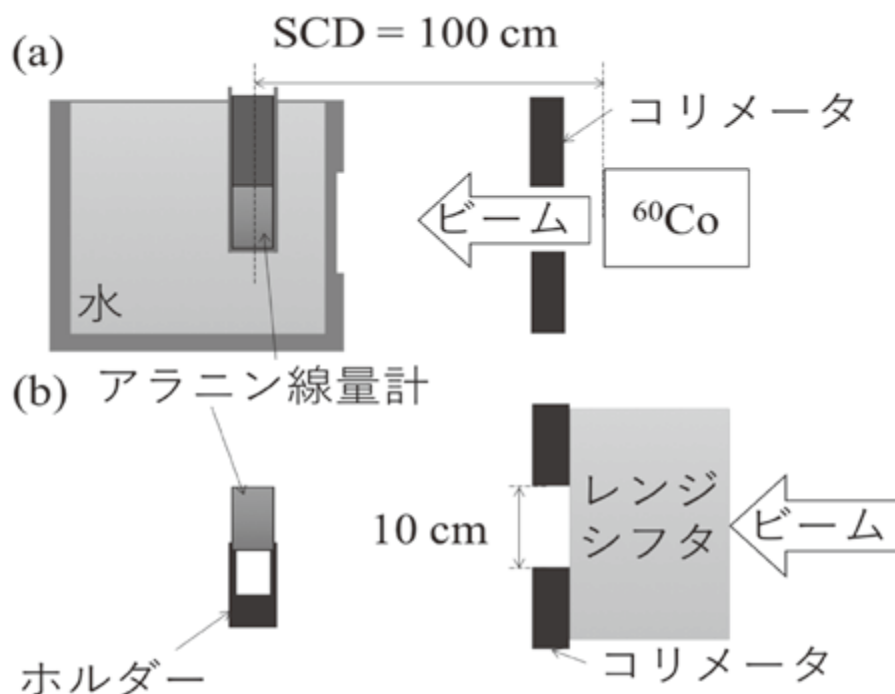


図 1. 実験体系 (a) Co-60 $\gamma$  線照射の実験体系 (b) 炭素線照射の実験体系

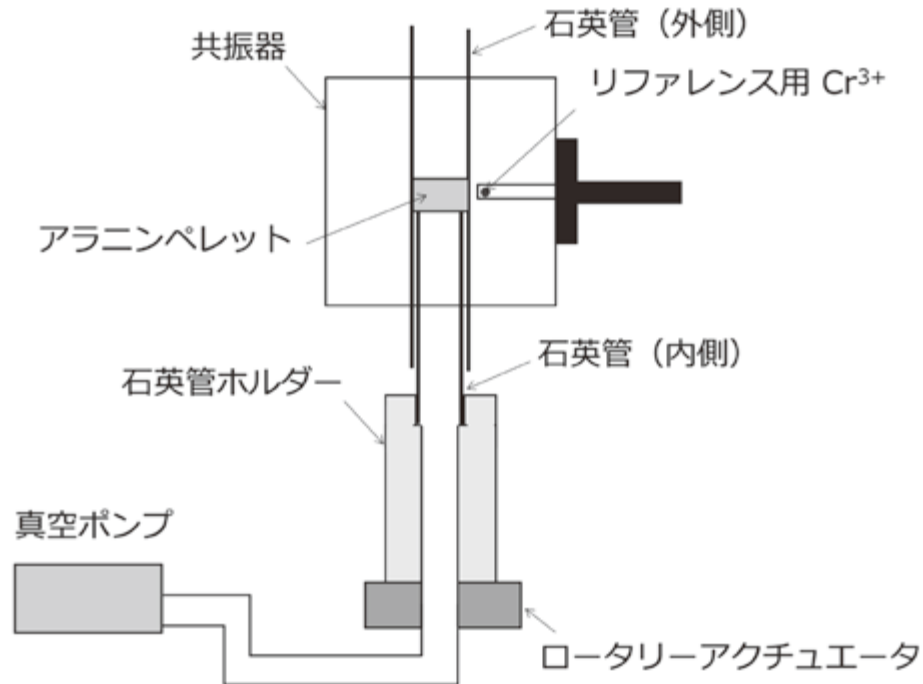


図 2. ESR 測定の概略図

測定点における線量とモニタチェンバのカウント比を決定した。Co ガンマ線の照射と同様に、アラニン線量計には 10, 20, 30 Gy 照射を行い、各線量点で 3 つの線量計に照射を行った。

アラニン線量計の信号値は、産総研の電子スピン共鳴 (ESR) 装置 (Bruker Biospin, EMX micro) を用いて測定した (図 2)。石英管と真空ポンプを用いて、共振器内でアラニンペレットを固定し、基準信号となる  $\text{Cr}^{3+}$  をアラニンペレットの側に固定した。石英管はロータリーアクチュエーターに繋がれており、回転できるような仕組みとなっている。アラニンペレットの信号値を  $\text{Cr}^{3+}$  の信号値とペレットの質量で割り、バックグラウンドの信号を引いたものが 1 回の測定の測定値となるが、1 つのペレットにつき、ペレットを  $72^\circ$  毎回転し 5 点 ( $0^\circ, 72^\circ, 144^\circ, 216^\circ, 288^\circ$ ) で測定を行い、1 つの線量計中の 4 つのペレットの平均値をその線量計から得られる測定値とした。

### 3. 結果と考察

炭素線と Co-60 $\gamma$  線の照射により得られた測定点とその検量線を図 3 に示す。横軸は実験でアラニン線量計に照射した線量、縦軸は ESR 信号値を表している。炭素線を照射した結果を赤色、Co-60 $\gamma$  線を照射した結果を青色で示している。図に示されている検量線は、測定点を線形フィッティングしたものである。どちらのビームにおいても、ESR 信号値が線量に対して比例して増加していることがわかる。しかし、炭素線の検量線は明らかに Co-60 $\gamma$  線の検量線よりも傾きが小さいことが見て取れる。この違いは、炭素線が Co-60 $\gamma$

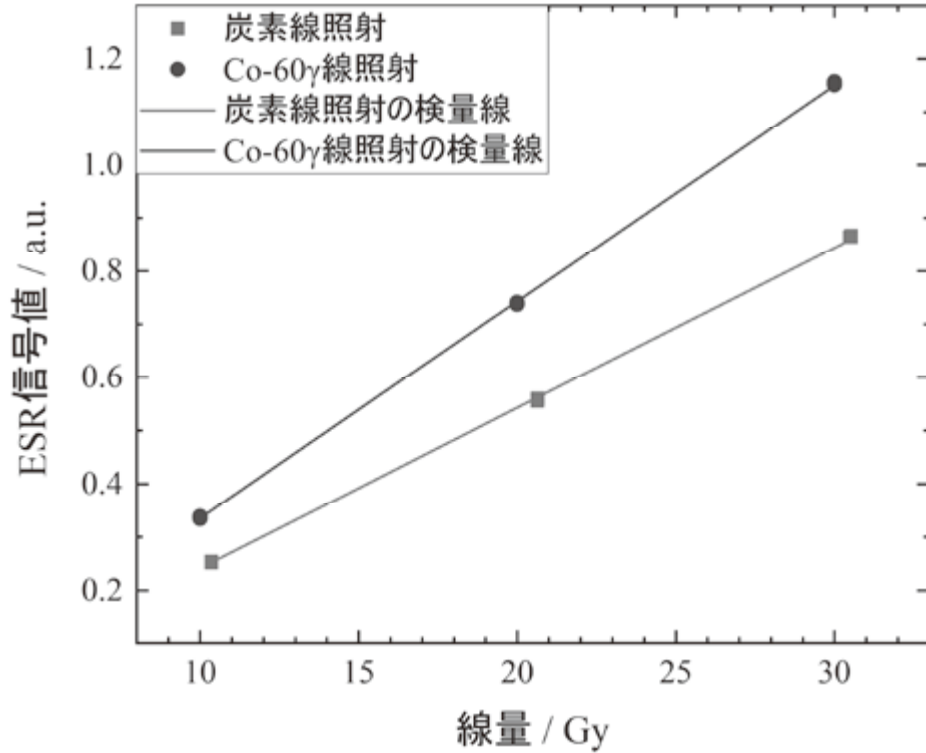


図 3. 実験により得られた検量線

表 1. 検量線の傾きと不確かさ

	傾き [ $\text{Gy}^{-1}$ ]	不確かさ ( $k=1$ ) [%]
炭素線	0.03021	0.65
Co-60 $\gamma$ 線	0.04066	0.31

線よりも大きい線エネルギー付与 (LET) を持つことが原因であると考えられる。また、炭素線の大きい LET により、アラニン分子の一部がラジカルを発生せずに破壊されているのではないかと考えられる。

表 1 に、炭素線と Co-60 $\gamma$  線のそれぞれの検量線の傾きとその不確かさを示す。ここで、炭素線と Co-60 $\gamma$  線の検量線の傾きをそれぞれ  $g_c$  と  $g_\gamma$  とすると、Co-60 $\gamma$  線に対する炭素線の相対的な応答  $\eta$  は、以下のように表される。

$$\eta = \frac{g_c}{g_\gamma} \quad \#(1)$$

表 1 より、本研究で得られた炭素線の相対的な応答  $\eta$  は、 $0.7431 \pm 0.0054$  ( $k=1$ ) となった。この値は Hermann らによって報告された 0.95 よりも小さい値となっている<sup>1</sup>。その原因として、我々は SOBP 中心にて測定を行ったが、Hermann らはプラトー領域で測定を行



っていたことが挙げられる。SOBP 中心はプラトー領域よりも LET が高いため、Hermann らよりも小さい $\eta$ が得られたと考えられる。

また、表 1 より、炭素線の検量線の傾きの不確かさが Co-60 $\gamma$  線よりも大きくなっていることが分かる。これは、炭素線では Co-60 $\gamma$  線よりも信号値が小さく、ノイズに影響されて ESR スペクトルの変動が大きくなっていることが原因だと考えられる。

#### 4. まとめ

本研究では、医療用炭素線に対するアラニン線量計の応答について研究を行った成果を報告した。290 MeV/n の炭素線の SOBP ビームに対して、10～30 Gy まで信号値が増加しており、この線量範囲では十分に線量測定が可能であることが分かった。これにより、アラニン線量計を炭素線の第三者出力線量評価に使用できる可能性が示唆された。炭素線に対する応答は、Co-60 $\gamma$  線に対する応答よりも約 22 %小さくなったが、これは LET の違いによるものだと考えられた。今後は、照射する線量範囲を拡大し、アラニン線量計が炭素線に対してどの程度の線量範囲まで使用できるかどうか明らかにする。また、SOBP 領域とは異なる LET であるプラトー領域で照射を行い、LET によってどの程度応答が変化するかどうか明らかにする。

#### 5. 謝辞

この研究は、放医研重粒子線がん治療装置の共同利用の一環として行なわれた。

<sup>1</sup> Herrmann, R., Jäkel, O., Palmans, H., Sharpe, P., Bassler, N, Med. Phys. 38(4), 1859–1866 (2011).

# アラニン線量計を用いた医療用炭素線の線量測定技術

○山口 英俊<sup>1</sup>, 清水 森人<sup>1</sup>, 森下 雄一郎<sup>1</sup>, 平山 憲<sup>1,2</sup>, 加藤 昌弘<sup>1</sup>, 黒澤 忠弘<sup>1</sup>,  
田中 隆宏<sup>1</sup>, 齋藤 則生<sup>1</sup>, 坂間 誠<sup>3</sup>, 福村 明史<sup>3</sup>  
放射線標準研究グループ<sup>1</sup>, 駒沢大学<sup>2</sup>, 量研 放医研<sup>3</sup>

## 1. 研究の背景

炭素線治療における品質保証のために、第三者出力線量評価サービスの確立を目指している。このため、炭素線に対する応答特性を調べた。

## 2. 研究の内容

- (a) Co-60  $\gamma$  線では基準条件にて照射
- (b) 炭素線の照射は放医研にて290 MeV/uのビーム(6 cm幅のSOBP)を照射  
SOBP中心に線量計の中心が位置するようにレンジシフトを調整

## 3. 考察・議論

- 10~30 Gyの照射を行った結果、線量の増加に伴い信号値が線形に増加していた
- 10 Gyにおいても1.8%の不確かさ( $k=2$ )で線量測定が可能
- Co-60  $\gamma$  線との応答の比(検量線の傾きの比)は 0.74

表1. 検量線の傾きと不確かさ

	傾き [ $\text{Gy}^{-1}$ ]	不確かさ ( $k=1$ ) [%]
炭素線	0.03021	0.65
Co-60 $\gamma$ 線	0.04066	0.31

## 4. 結論および今後の展開

- ✓ アラニン線量計を用いることで医療用炭素線の線量測定が可能である
- ✓ 今後は線量の拡張や異なるLETのビームの照射を行う

5. 謝辞 この研究は、放医研重粒子線がん治療装置の共同利用の一環として行なわれた。

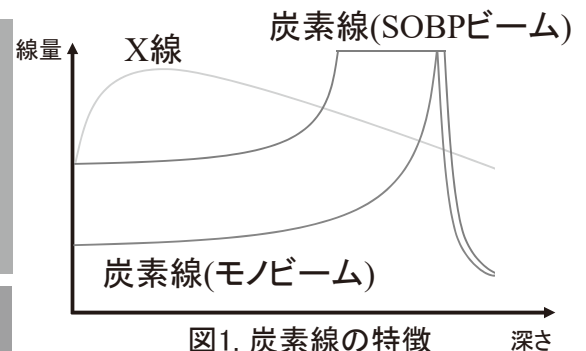


図1. 炭素線の特徴

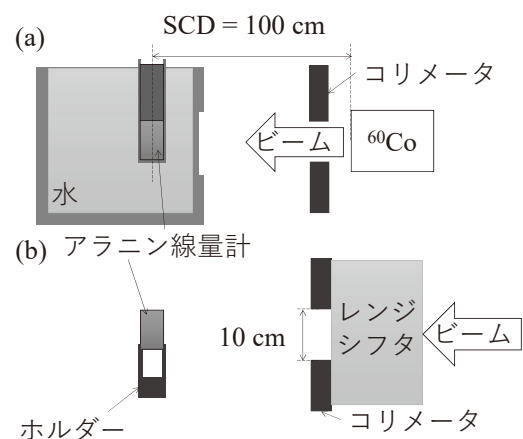


図2. 実験体系

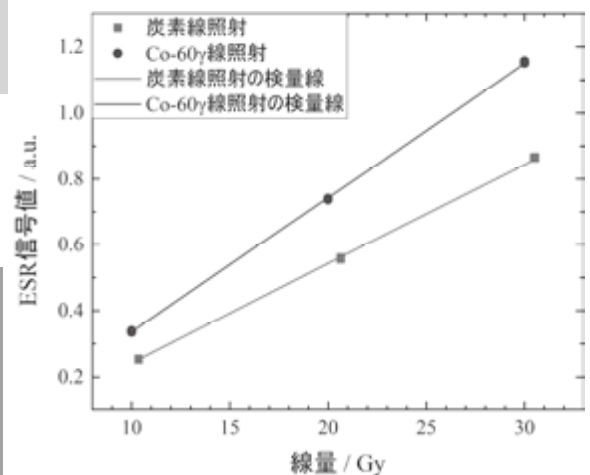


図3. 炭素線とCo-60  $\gamma$  線の検量線

# 先進医療開発を支える高精度中性子計測技術

放射能中性子標準研究グループ 増田 明彦、松本 哲郎、原野 英樹

## 要旨

近年、ホウ素中性子捕捉療法（BNCT）のための加速器中性子源施設の開発が相次いでおり、各地の医療機関への配備が準備されている。当グループでは、加速器中性子源開発途上で利用可能であった微弱中性子ビームのスペクトラルフルエンスを  $^3\text{He}$  比例計数管を検出素子としたボナー球スペクトロメーター（BSS）を用いて測定し、中性子源の中性子発生能力を評価することに成功している。一方で、治療レベルの大強度中性子を直接測定するために、電流モード動作させた光電子増倍管（PMT）と結合した  $^6\text{Li}$  及び  $^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターを検出素子とした大強度中性子用 BSS の開発に取り組んでいる。これまでに、検出素子としての強度リニアリティの評価を終え、ボナー球減速材に挿入した状態での応答評価実験を進めており、今後加速器 BNCT 施設において治療レベルの大強度中性子ビームに対する特性評価実験を実施していく予定である。

## 1. はじめに

ホウ素中性子捕捉療法（boron neutron capture therapy, BNCT）は中性子を利用するがんの治療法である。 $^{10}\text{B}$  を含みがん細胞に集積しやすい薬剤をがん患者に投与し中性子を照射すると、図 1 に示すようにがん細胞内で  $^{10}\text{B}$  と中性子による核反応で  $^4\text{He}$  と  $^7\text{Li}$  が生成する。これらは生体細胞中での飛程がそれぞれおよそ  $5\ \mu\text{m}$  および  $10\ \mu\text{m}$  の高 LET 粒子であるため、その細胞だけを破壊することができる。このような特徴から、手術が難しい箇所に来たがんや正常組織の間に散らばったがんのような難治性がんに対する切り札的な治療法として期待されている。BNCT は従来研究用原子炉を備えた大規模拠点において基礎研究が行われてきたが、近年は小型ないし中型の加速器中性子源を用いることで医療機関にも配備可能な加速器 BNCT の研究開発が盛んである。

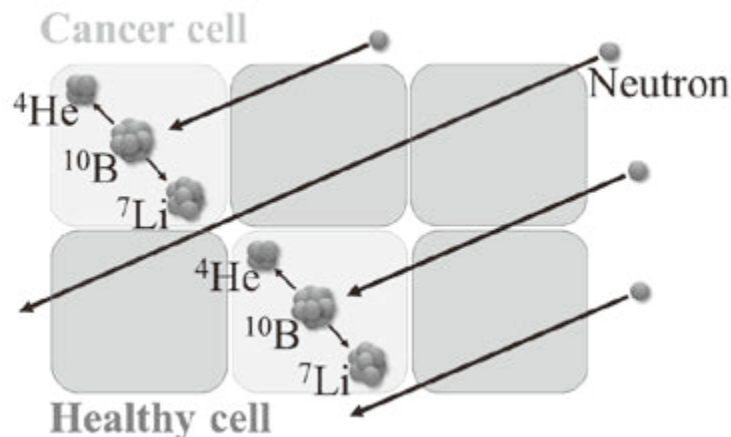


図 1. BNCT の原理

しかし、加速器 BNCT 中性子源は施設によってその仕様が多様である。その要素としては中性子の発生に用いるイオンビームの種類やエネルギー、加速方式、中性子発生ターゲット物質やその性状と担持機構、発生した中性子を治療に適したエネルギー分布に変調する減速機構、不要な中性子やガンマ線のフィルタリング機構、そして中性子ビームを整形する反射材・コリメーター機構等が挙げられる。そのため、治療効果を最適化するためには、各施設においてモンテカルロ計算と実測によって中性子スペクトラルフルエンス（中性子のエネルギー分布と強度）を把握することが必要である。

## 2. 微弱中性子ビームに対する測定実績

我々は、いばらき中性子医療研究センターの加速器 BNCT 施設<sup>1</sup>において、施設開発途上で利用可能な、治療時の 1/3000 の強度の微弱な中性子ビームを利用し、既存の <sup>3</sup>He 比例計数管を用いたボナー球スペクトロメーター（Bonner sphere spectrometer、BSS）によりその中性子源特性を評価した。BSS は、低エネルギー中性子検出器を異なる大きさの中性子減速材の中に設置することで多様なエネルギー応答特性（図 2）を持たせたボナー球検出器群であり、各ボナー球検出器による測定結果と既知の応答関数群とから逆問題的に中性子スペクトラルフルエンスを導出（アンフォールディング）することができるものである。

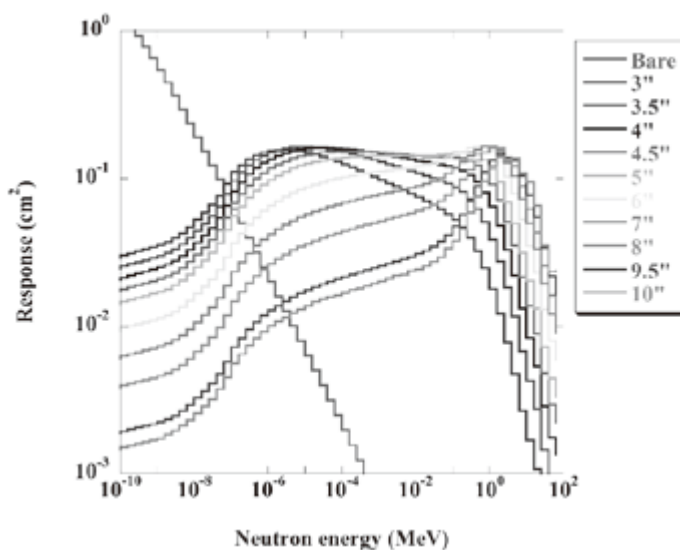


図 2. BSS の応答関数

実際に治療を行うビームポートで測定を行うと検出器とコリメーターとの間で中性子の多重散乱が発生して測定結果に悪影響を与えるため、ビームポートから 1 m および 2 m の地点で測定を行い、アンフォールディングで得られた中性子スペクトラルフルエンスをモンテカルロ計算結果と比較し、その結果を用いてモンテカルロ計算結果をスケールリングすることによってビームポートにおける中性子スペクトラルフルエンスを評価した。この結果をもとに陽子ビーム電流あたりに得られる熱外中性子フラックスを評価し、想定される加速器性能で治療に必要な中性子強度が得られることも確認した（図 3）<sup>2</sup>。

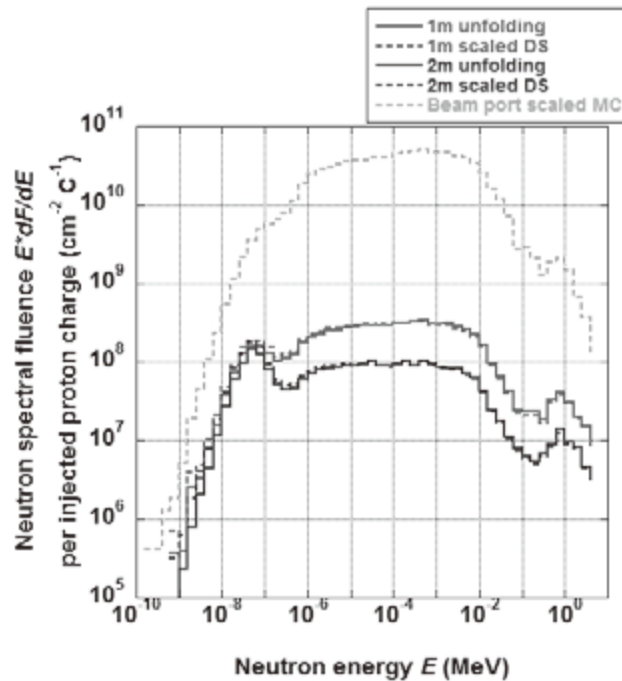


図 3. BSS による微弱中性子ビームのスペクトラルフルエンス測定結果と、  
 ビームポートにおける中性子スペクトラルフルエンスの評価結果

### 3. 治療レベルの大強度に対応した BSS の開発

$^3\text{He}$  比例計数管を用いた BSS によって治療時の  $1/3000$  の強度の微弱中性子ビームに対する測定は成功したものの、治療レベルの大強度中性子に対する直接測定には課題が残った。既存の検出器で  $10^9 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  もの大強度中性子ビームを測定すると検出器が出力するパルス信号が重複するため、正確な検出イベントを計数することは困難である。そこで、我々は Li ガラスシンチレーターと電流モード動作させた光電子増倍管 (Photomultiplier tube, PMT) からなるシンチレーターユニットを低エネルギー中性子検出素子とした BSS (図 4) を開発している。PMT を電流モード動作させることで大強度中性子による高イベント率に対応することができる一方で、パルス信号波高情報が失われ、通常 Li ガラスシンチレーターによる測定に対して行われるパルス信号波高による中性子信号-ガンマ線信号弁別 (n- $\gamma$ 弁別) が利用できなくなるため、中性子に有感な  $^6\text{Li}$  ガラスシンチレーターと中性子に感度を持たない  $^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターによる同時測定をし、それらの電流信号の差分を取ることで中性子に対する電流信号成分を抽出することとした。



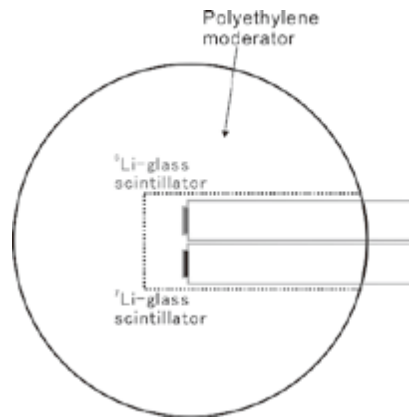


図 4. 大強度中性子用 BSS の構造

${}^6\text{Li}$  ガラスシンチレーターと  ${}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターの差分を取る方法はよく知られた手法である<sup>3</sup>が、本手法ではパルス信号波高情報が利用できないために n- $\gamma$ 弁別を  ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$  の差し引きに完全に依存するため、その精度の向上に取り組んだ。精度向上のために、 ${}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターにもわずかに含まれる  ${}^6\text{Li}$  による中性子信号の影響の補正係数  $a$  と、 ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーター、PMT、およびそれらの光学カップリングの個体差の影響の補正係数  $d$  を導入し、 ${}^6\text{Li}$  ガラスシンチレーターからの電流信号  $I_{6\text{tot}}$  のうち、 ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$  反応に起因する中性子信号電流  $I_{6\text{nt}}$  は

$$I_{6\text{nt}} = \frac{I_{6\text{tot}} - \frac{I_{7\text{tot}}}{d} - I_{6\text{dark}} + I_{7\text{dark}}}{1 - a}$$

と求めることとした。ここで、 $I_{7\text{tot}}$  は  ${}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターからの電流信号、 $I_{6\text{dark}}$  および  $I_{7\text{dark}}$  はそれぞれ  ${}^6\text{Li}$  ガラスおよび  ${}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターからのバックグラウンドを含む暗電流である。 ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターは図 5 に示すようなハウジングに PMT とともに収め、提案した  ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターの差分によるガンマ線影響補正を行った上での熱中性子強度に対するリニアリティを評価したところ良好な結果を得ており<sup>4</sup>、さらに大強度の原子炉熱中性子に対するリニアリティ試験も計画している。これらをボナー球減速材に隙間なく挿入し大強度中性子用 BSS とするためのアタッチメント (図 5) を製作し、ボナー球検出器としての応答特性評価試験 (図 6)<sup>5</sup> も開始したところである。BSS としてアンフォールディングに用いるためには各ボナー球検出器としての中性子エネルギー応答関数をモンテカルロ計算で準備することが不可欠であり、通常のパルスモード動作での応答、モンテカルロ計算による応答、および電流モード動作での応答の三者の整合性がとれるよう測定、解析とモンテカルロ計算のチューニングを引き続き進めている。



図 5.  ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターと PMT を収めたハウジングと、ボナー球への挿入アタッチメント

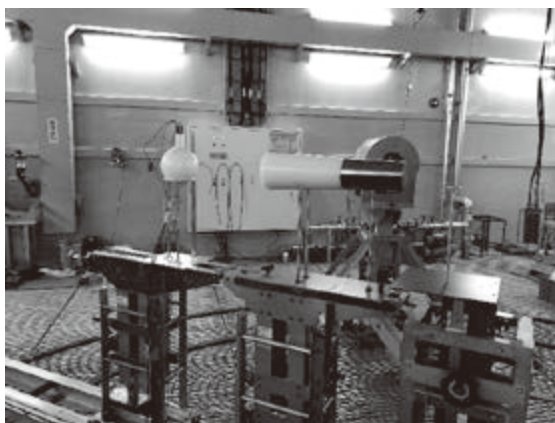


図 6. 産総研中性子標準場における大強度中性子用ボナー球検出器の応答測定

#### 4. まとめと今後の展開

加速器 BNCT で用いられる熱外中性子ビームの特性評価手法の研究開発を行っている。既に、加速器 BNCT 施設の開発段階で利用可能な微弱中性子ビームを利用し、 ${}^3\text{He}$  比例計数管を用いた既存の BSS による中性子スペクトラルフルエンスの測定に成功している。現在は、治療レベルの大強度中性子ビームの中性子スペクトラルフルエンスを直接測定するために、 ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$  ガラスシンチレーターと電流モード動作させた PMT を用いた大強度中性子用 BSS の開発に取り組んでおり、その強度リニアリティの検証と応答特性評価試験を実施している。今後は応答特性評価をさらに進め、応答関数を整備し、加速器 BNCT 施設における実測を行っていく予定である。

#### 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 JP25871197、JP16K21679、JP16K09030、および公益財団法人精密測定技術振興財団助成金の助成を受けたものです。

- <sup>1</sup>H. Kumada, A. Matsumura, H. Sakurai, T. Sakae, M. Yoshioka, H. Kobayashi, H. Matsumoto, Y. Kiyonagi, T. Shibata, H. Nakashima, *Appl. Radiat. Isot.* **88**, 211-215 (2014).
- <sup>2</sup>A. Masuda, T. Matsumoto, K. Takada, T. Onishi, K. Kotaki, H. Sugimoto, H. Kumada, H. Harano, T. Sakae, *Appl. Radiat. Isot.* **127**, 47-51 (2017).
- <sup>3</sup>S. Taniguchi, M. Takada, T. Nakamura, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* **460**, 368-373 (2001).
- <sup>4</sup>松本哲郎、増田明彦、原野英樹、堀順一、佐野忠史、2017年 第64回応用物理学会春季学術講演会。
- <sup>5</sup>増田明彦、松本哲郎、熊田博明、高田健太、堀順一、櫻井良憲、佐野忠史、原野英樹、榮武二、2018年第79回応用物理学会秋季学術講演会。

# 先進医療開発を支える高精度中性子計測技術

○増田 明彦、松本 哲郎、原野 英樹 放射能中性子標準研究グループ

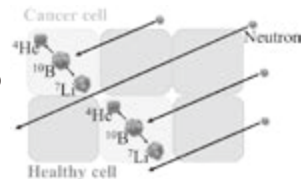
## 1. 研究の背景

### ホウ素中性子捕捉療法(BNCT)

がん細胞に集積しやすい  
 $^{10}\text{B}$ 製剤を投与

中性子照射

$^{10}\text{B}$ と中性子の核反応で生じる  
高LET粒子ががん細胞を破壊  
(手術が難しいがんに対する  
切り札)



### 加速器中性子源への移行

原子炉を用いた  
黎明期

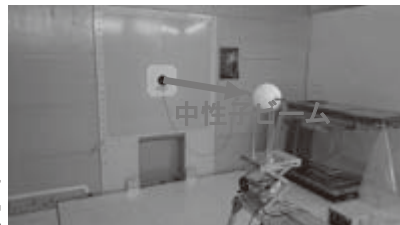


各地の医療機関に配備可能な小～中型  
加速器中性子源の開発が急速に進行

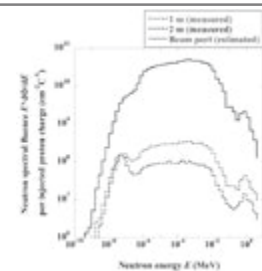
中性子エネルギー分布の  
施設依存性が強く、正確な  
治療計画を立てるために  
は実測による評価が重要

### 微弱ビームを用いた加速器BNCT中性子源の測定

これまでに、いばらき中性子医療研究センター(東海村)にて、施設  
開発中の微弱中性子ビームを利用し、ボナーアンフォールディング法  
による加速器BNCT中性子源のエネルギー分布測定の原理実証に  
成功している。



$^3\text{He}$ 比例計数管を用いた  
ボナー球スペクトロメーター  
による中性子ビームの測定



中性子強度のエネルギー分布

中性子発生ターゲット(Be)に入射する陽子ビーム  
電荷量あたりの中性子スペクトラルフルエンス

## 2. 治療レベル大強度中性子のエネルギー分布測定技術の開発

大電流陽子ビームによる治療レベル大強度中性子に対応するために、Liガラスシンチレーターと  
電流モードPMTによるボナー球スペクトロメーターの開発を進めている。



ガンマ線影響を除去するために  
 $^6\text{Li}$ ガラスシンチレーターと $^7\text{Li}$ ガラ  
スシンチレーターを用いた大強度  
中性子用ボナー球検出器の設計



大強度中性子用ボナー球検出器  
の応答特性評価試験

加速器BNCT中性子施設  
における治療レベル大強度  
中性子ビームの直接測定  
(2018年11月頃～を予定)

# ラドン放射能モニタ校正のためのガス循環システム

放射能中性子標準研究グループ 古川 理央、柚木 彰

## 要旨

産総研 放射能中性子標準研究グループは、大気中に存在する自然放射性核種のラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) の放射能濃度 [ $\text{Bq m}^{-3}$ ] の国家標準を立ち上げる。校正範囲は  $5 \text{ kBq m}^{-3}$ ~ $3 \text{ MBq m}^{-3}$  で 2022 年の標準供給開始を目指す。標準器は  $\alpha$  線スペクトル測定を行い、ラドンの放射能濃度の絶対測定が可能な比例計数管を用いる。標準器によってワーキングスタンダードである通気式電離箱を校正し、通気式電離箱で濃度の決定したラドンでラドンモニタの応答を校正する。

## 1. はじめに

ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) は大気中に存在する自然由来の放射性物質である。親核種はラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) であり、子孫核種には  $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{210}\text{Bi}$ 、 $^{210}\text{Po}$  及び  $^{206}\text{Pb}$  がある。子孫核種は安定な  $^{206}\text{Pb}$  に至るまで全て放射性である。ラドン (半減期約 3.8 日) の短半減期子孫核種 ( $^{218}\text{Po}$  (半減期約 3 分)、 $^{214}\text{Po}$  (半減期約 164  $\mu\text{s}$ )) は肺に沈着し、 $\alpha$  線被ばくを起こす。肺への  $\alpha$  線被ばくは肺がんの原因になると考えられ、単位体積当たりのラドンの放射能濃度 [ $\text{Bq m}^{-3}$ ] に規制を導入する動きがあり、測定のニーズが高まっている。ラドン測定器の信頼性確保のために測定器の校正は重要であり、規制が導入されている欧州などを中心に、諸外国の計量標準機関においてラドン濃度の国家標準による標準供給が行われている。一方、日本では国家標準による標準供給の実績が無く、国家標準の立ち上げが要望されてきた。このような背景を受け NMIJ 放射能中性子標準研究グループでは、2022 年の標準供給開始を目指し、ラドン放射能濃度の国家標準の立ち上げを行っている。現在校正に使用するガス循環システムを構築しており、本稿ではそのガス循環システムを中心に校正の方針について紹介する。

## 2. 校正の方針

MEPC による絶対測定で濃度の決定したラドンでワーキングスタンダードとなる通気式電離箱を校正し、ワーキングスタンダードで値付けしたラドンで校正依頼者が持ち込んだラドンモニタを校正する (図 1)。校正依頼者には校正事業者の他、測定装置のメーカーなどを想定している。

校正範囲は校正対象となる市販のラドンモニタの測定範囲を考慮し、 $5 \text{ kBq m}^{-3}$ ~ $3 \text{ MBq m}^{-3}$  とする。市販されている代表的なラドンモニタである AlphaGUARD™ (BERTIN INST.) の測定範囲は  $2 \times 10^{-5} \text{ Bq m}^{-3}$ ~ $2 \text{ MBq m}^{-3}$  であるが、バックグラウンド計数の分離に有利な高濃度側での校正を想定している。

標準器にはラドン濃度の絶対測定が可能な「多電極比例計数管 (MEPC: Multi-electrode proportional counter)」を用いる<sup>1</sup>。MEPC は胴部分 SUS304、フランジ部分が PEEK 樹脂製の円筒形であり、内径 7 cm、長さ 32 cm である。フランジの中心から円筒の長手方向に金



メッキを施したタングステン製の陽極線が張られている。MEPC は P10 ガスを電離媒体としてラドンとその子孫核種から放出される  $\alpha$  線のパルス波高スペクトルを取得し、合計の計数から放射能を求める。MEPC の特徴は両端のフランジ部分に各 6 本の同心円状の電極（リング電極）が設置されている事である。これはフランジ近傍の電場の歪みを補正し、電離電子のガス増殖を計数管内の位置によらず一様にする事を目的とし、計数を正確に評価するために必要である。

### 3. ガス循環システム

校正に使用するガス循環システムには、MEPC、ワーキングスタンダードとなる通気式電離箱、ラドンモニタを格納するラドンモニタ用チャンバーの他に、ガスの温度や圧力などの計器類を設置する。校正対象となる市販のラドンモニタは空気中での使用を想定しているため、ワーキングスタンダードとして空気と P10 ガスの両方で稼働する通気式電離箱を使用する。通気式電離箱は同一濃度での P10 ガスと空気の応答の違いを換算し、空気が担体の場合に濃度が測定できるようにしておく。ガス循環システムの概要を図 2 に示す。校正は次に示す手順で行う。

1. ワーキングスタンダードとなる通気式電離箱の P10 ガスと空気の応答の違いを求める。
2. P10 ガスを担体とし、MEPC により通気式電離箱を校正する（黄色のループ）。
3. 空気を担体とし、通気式電離箱でラドンの濃度を測定する（緑のループ）。
4. 濃度のわかったラドンでラドンモニタを校正する。

通気式電離箱を P10 ガスを流すループ（黄色のループ）で使用した後空気を流すループ（緑のループ）で使用する事を考慮し、配管の付け替えが無く 2 つのループを切り替えられるようになっている。このガスループは国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所（放医研）のラドン実験棟に設置する予定である。今後は放医研に一式持ち込み実際にガスを流し、設計通りの動作が可能であることを確認する。さらに MEPC の検出効率を求め、通気式電離箱の P10 ガスと空気の応答の違いを評価する。

近年ドイツ等の計量研で行われている低温技術を用いた校正方法<sup>2</sup>では、絶対測定で濃度の定まったラドンを容器に充填したラドン標準ガスを作製し、標準ガスをラドンモニタを入れたチャンバー内に充填させ校正を行っている。この方法ではラドンを低温に冷やした容器に凝固させて捕集し、容器を封じ切る作業が必要である。絶対測定を終えたラドンが全て容器に捕集されている必要があるが、捕集しきれずに残ったラドンがある可能性を考慮しなければならない。また、場合によっては校正依頼者に標準ガスを郵送する必要がある、その際ラドンの絶対測定からラドンモニタの校正までに時間があき、ラドンの減衰の影響が大きくなる。なお線源の取り扱い及び輸送について、日本では法令により厳しく規制されている。

今回組み上げるガス循環システムではラドンを充填する作業が必要ないため、校正が簡便になることが期待できる。ワーキングスタンダードによる測定と同時にラドンモニタの測定が可能のため、ラドンモニタの校正においてラドンの減衰の影響を抑えることができる。また、ラドンモニタを校正実施場所に持ち込む事で、放射性物質を扱う許可を持たない校

正依頼者でも校正ができるというメリットがある。

#### 4. 今後の方針

現在組み上げているガス循環システムを図3に示す。今後は放医研のラドン実験棟でガス循環システムを組み上げて設計通りの動作が可能であることを確認する。同時に各装置の性能評価を行う。

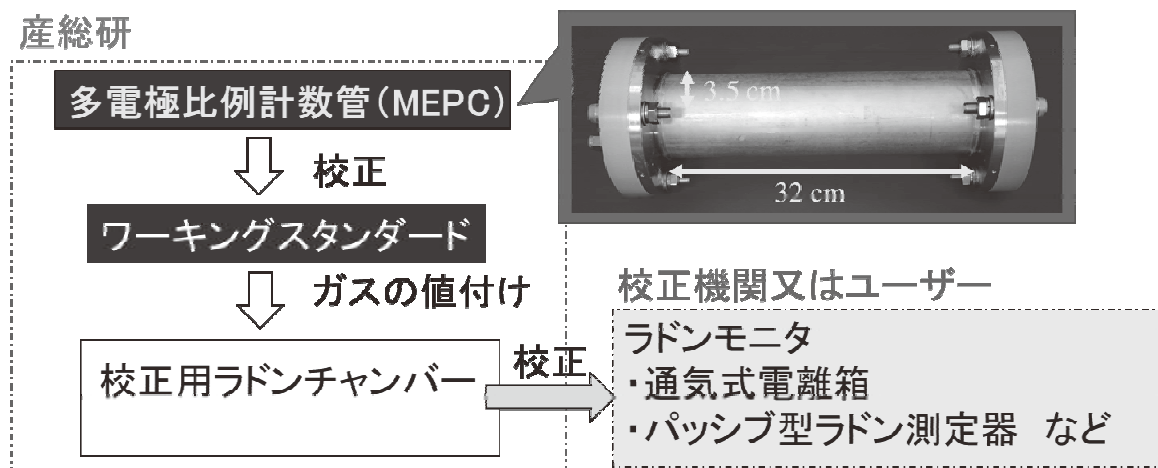


図1. 校正方法と多電極比例計数管 (MEPC) 外観

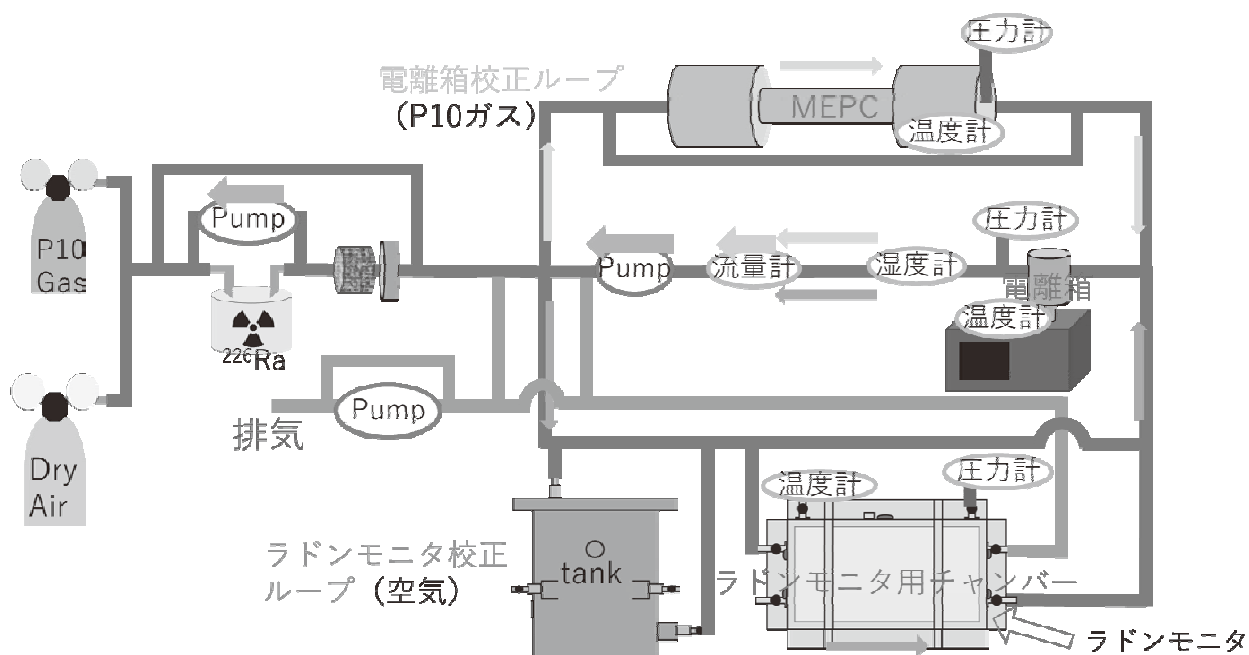


図2. ガス循環システムの概要

緑色線が主に使用するガス配管を表し、水色線が排気に使用するガス配管を表す。P10 ガスを流すループが上側、黄色矢印で示したループであり、空気を流すループが下半分、黄緑色矢印で示したループである。ワーキングスタンダードである電離箱を2つのループが合流する位置に設置し、配管の付け替えが無く2つのループを切り替えられるようになっている。

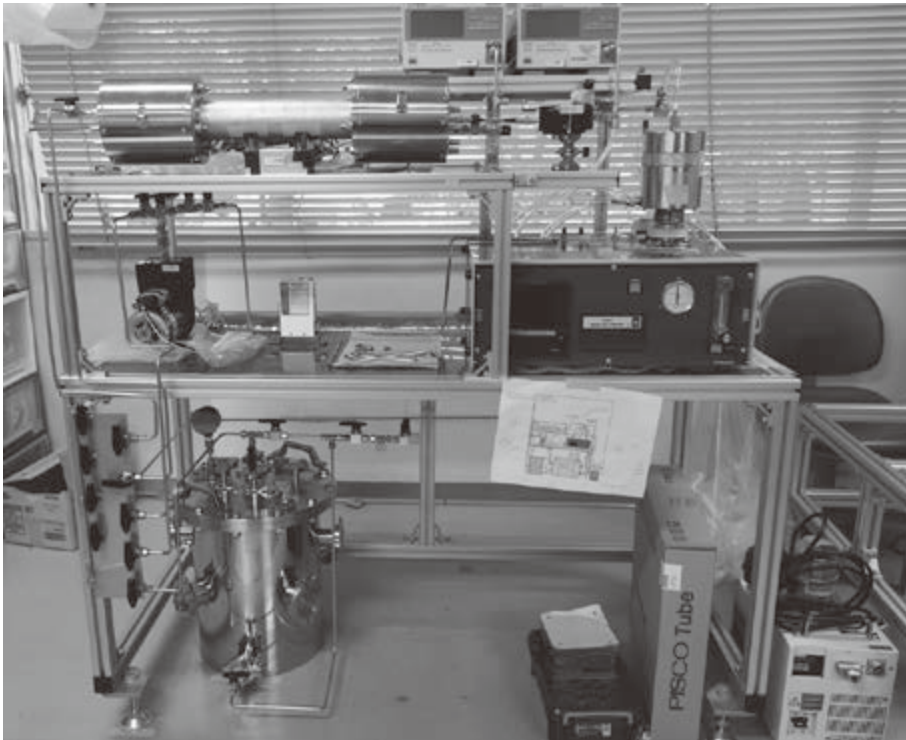


図3. ガス循環システム

組み立て中のガス配管を示す。組み立て作業は産総研で行っている。

<sup>1</sup> 古川ら, JASIS2017 コンファレンス. 分析計測標準研究部門第3回シンポジウム(2017).

<sup>2</sup> R. Dersch, Primary and secondary measurements of  $^{222}\text{Rn}$ , *Appl. Radiat. Isot.* **60**, 387-390 (2004).

# ラドン放射能モニタ校正のための ガス循環システム

○古川理央、柚木彰 放射能中性子標準研究グループ

## 1. 開発の背景

大気中に存在する自然放射性核種のラドン( $^{222}\text{Rn}$ )とその短半減期子孫核種( $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Po}$ )の $\alpha$ 線による内部被ばくは肺がんの原因の一つと考えられている。ラドン濃度測定のニーズの高まりを受け、産総研はラドン放射能濃度の国家標準を立ち上げる。本発表では、校正のためのガス循環システムについて紹介する。

## 2. 開発の内容

ラドンの校正は図1に示すように多電極比例計数管(MEPC)で電離箱を校正して、その電離箱を用いて校正用チャンバーに入れたラドンモニタを校正する。校正の流れは以下の通りとなる。

1. ワーキングスタンダードとなる電離箱のP10ガスと空気の応答の違いを求める。
2. P10ガスを担体とし、MEPCにより電離箱を校正する(黄色のループ)。
3. 空気を担体とし、電離箱でラドンの濃度を測定する(緑のループ)。
4. 濃度のわかったラドンでラドンモニタを校正する。

本校正方法ではラドンを容器に捕集する必要が無いため、ラドンが飛散する危険が小さく、ラドンの減衰が測定に与える影響を抑えられ、さらに線源の輸送に関する煩雑な手続きを避けられるというメリットがある。

## 3. 今後の展開

ガス循環システム(図2)は、量研機構 放医研のラドン棟に持ち込んで実際にガスを流して設計通りの動作が可能であることを確認し、電離箱を含めた性能評価を行う。標準供給開始は2022年を目指す。

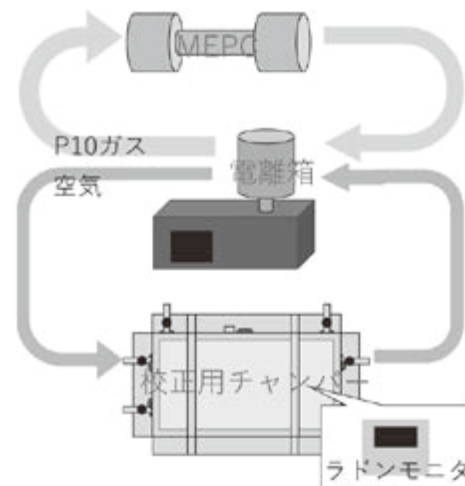


図1 校正概念図

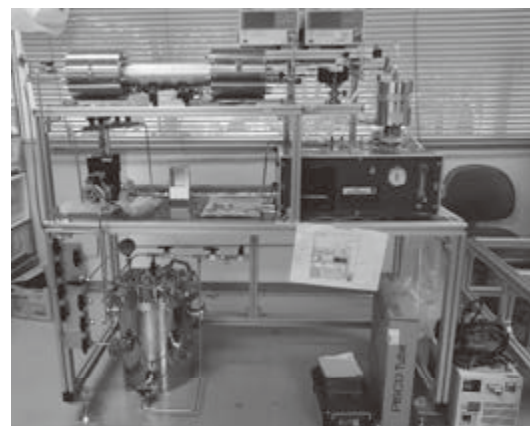


図2 校正のためのガス循環システム



# レーザー共鳴イオン化による超高感度質量分析法の開発：

## ストロンチウム同位体分析への適用

ナノ分光計測研究グループ 永井 秀和

### 要旨

レーザー共鳴イオン化とパルスレーザー蒸発法を組み合わせた高感度質量分析装置を開発し、ストロンチウムの同位体分析に適用した。固体試料（硝酸ストロンチウム、塩化ストロンチウム）をパルスレーザー（波長 1064 nm）照射で気化し、ストロンチウムの吸収に合わせた波長 293.3 nm のレーザーで共鳴に光子イオン化を行った。イオンは飛行時間型の質量分析計で同位体分離し検出した。本装置により、海水（ストロンチウム濃度 1 ppm）の様な試料でも分離濃縮などの前処理なしに少量（0.5  $\mu$ L）あれば十分、分析可能であることが明らかになった。

### 1. はじめに

レーザー共鳴イオン化による質量分析法は、測定対象となる原子や分子を選択的に効率よくイオン化できることから、高感度で高選択的な分析法として知られている。固体試料をパルスレーザー照射により気化し、測定対象とする原子の吸収波長にイオン化レーザーの波長を調整することで、試料に含まれる測定対象の原子だけを検出することが可能である。そのため測定対象となる試料の分離抽出などの前処理の手間が必要無くなる。本研究ではこのようなレーザー脱離、共鳴イオン化と飛行時間型質量分析を組み合わせた装置を構築し、ストロンチウムの同位体分析に適用した。測定例として海水をサンプルとした結果を紹介する。

### 2. ストロンチウムの同位体分析

ストロンチウムの放射性同位体  $^{90}\text{Sr}$  は、核燃料廃棄物のうち  $^{137}\text{Cs}$  と共に半減期が約 30 年と長く、長期にわたって環境影響が懸念されている物質である。 $^{90}\text{Sr}$  が発生する放射線は  $\beta$  線のみであり  $^{137}\text{Cs}$  の様に特定の  $\gamma$  線による検出が出来ない。そのため放射線による分析には他の  $\beta$  線源となる不純物からの分離抽出、さらに  $\beta$  崩壊による  $^{90}\text{Y}$ （半減期 64 時間）からの  $\beta$  線の発生量が平衡状態に落ち着くまでに 2 週間以上待つ必要がある。質量分析はこの様な分析にかかる時間を大幅に短縮することができる。さらに共鳴イオン化を用いれば不純物として試料に含まれている可能性のある同量体  $^{90}\text{Zr}$  の存在を気にすることもないので、分離抽出の手間も省くことができる。

### 3. 測定装置

図 1 に測定装置の概略を示した。円筒型のメインチャンバーにリフレクトロン型の飛行時間型（TOF）質量分析計をつなぎ合わせた構成である。メインチャンバー中央の図中点線で囲まれた部分に配置された 3 枚の TOF 電極は、試料プレートを兼ねたりペラ電極と 2 枚のメッシュ電極（エキストラクタおよび接地電極）で、試料プレートに付着させた試料



にまず斜め 45 度からパルス幅 5 ns の YAG レーザー (基本波 1064 nm) を照射し、さらに電極と平行にイオン化のためのレーザー光として色素レーザーの 2 倍波 (293.3 nm) を気化した Sr 原子が拡散しないうちに照射した。共鳴イオン化により生成したイオンは加速

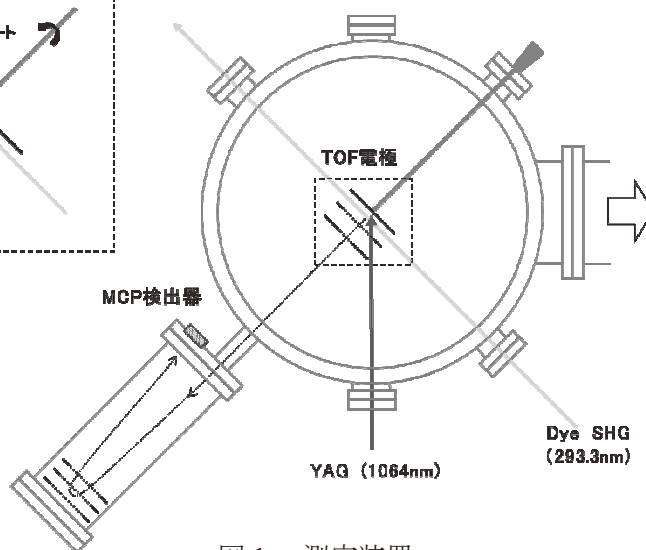
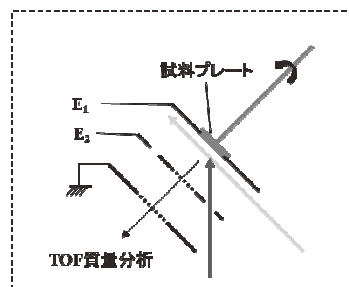


図 1. 測定装置

後、約 90 cm の飛行距離をもってマイクロチャンネルプレートに到達し、検出される。試料には、硝酸ストロンチウムの水溶液を試料プレート (ステンレスの円盤) に滴下し、乾燥固化したものをを用いた。水溶液の濃度は 0.1 ppm 程度で、0.5  $\mu\text{L}$  滴下するだけで充分である。試料プレートはマニピュレータにより真空を保ったまま回転させることで複数の試料を交換して測定可能である。

#### 4. ストロンチウムの TOF 質量スペクトル

図 2 に典型的な Sr の TOF スペクトルを示す。試料には硝酸ストロンチウムを用いた。横軸は飛行時間、縦軸はイオン強度を表している。Sr の安定同位体は  $^{84}\text{Sr}$ 、 $^{86}\text{Sr}$ 、 $^{87}\text{Sr}$ 、 $^{88}\text{Sr}$  の 4 種類で、それぞれに対応するピーク強度はよく自然存在比を再現している。これは同位体による吸収波長のシフトがレーザーの波長幅 ( $0.1 \text{ cm}^{-1}$ ) と比較して十分に小さく、同位体によるイオン化効率による違いがないためである。励起波長 293.3 nm は Sr の強い  $^1P_1 - ^1S_0$  の許容遷移に相当し、レーザーのパルスエネルギー 0.1 mJ でほぼ吸収の飽和が見られた。イオン化は励起状態からレーザー光をもう 1 光子吸収してイオン化エネルギーを超えることで達成される。イオン化のために別に強力なレーザー光を入れることでイオン化過程を促進させてやれば、吸収は飽和することなく完全にイオン化まで達し、究極的には 1 原子でも観測可能になる。もう

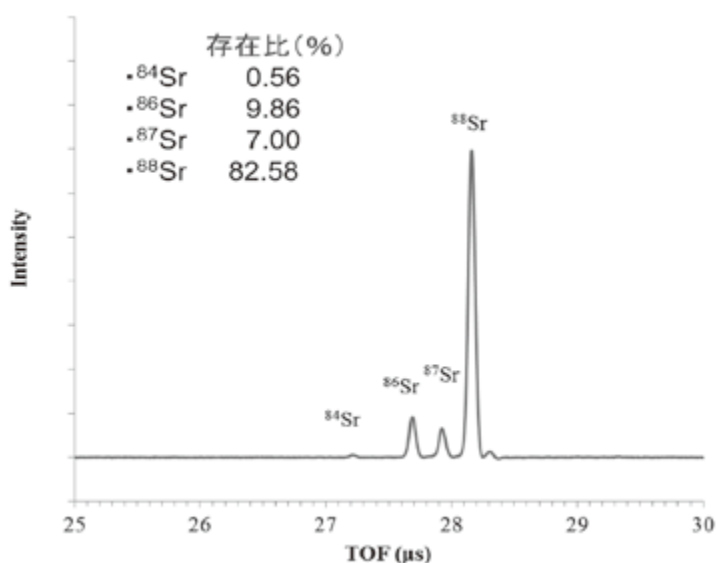


図 2. Sr の TOF 質量スペクトル

1つのレーザー光として、色素レーザーの倍波に変換されずに残された基本波をそのまま分離しないで入れたところ、約5倍までイオン強度の増加が確認された。

#### 5. 海水中のストロンチウムの測定

環境中の実試料として海水をそのまま滴下乾燥させたものを測定してみた。図3は測定したTOF質量スペクトルで、横軸は質量数( $m/z$ )に変換してある。海水中には1 ppmほどのSrが含まれているが、分離濃縮などの前処理をしなくても観測することができた。ただし、試料の大部分はNaClを中心とした他の塩分であるため、スペクトルにはレーザー脱離の際に発生した他のイオンのピークが多数存在する。質量数40付近の強いピークは、

イオン化エネルギーが低いカリウムが、脱離レーザーを照射した際に容易にイオン化して発生したものである。また、図3で下段のスペクトルは質量数80~100の部分拡大したもののだが、 $^{88}\text{Sr}$ より遅れて質量数90付近にもピークが見られる。これはイオン化レーザーを入れない時も観測されるので、やはり脱離イオン化したSr原子が、やや遅れて観測されたものと考えられる。

#### 6. 遅延パルス加速による脱離イオンの排除

このような脱離イオンの発生はしばしば分析の妨げとなる。脱離レーザーの出力を抑えればこれらの発生は減るが、全体的に気化する原子の量も減少するので検出感度は下がってしまう。レーザーの波長は、YAGレーザーの倍波532 nmと比較してみたが、よりよい結果は得られなかった。そこでイオンの加速にパルス電源を用いてイオン化レーザーのパルスと同期させることで、脱離イオンを分離できるように改良を加えた。

図4にその原理を示した。脱離レーザーが照射された時点では、試料が付着したリペラー電極には電位がかけられていない。エクストラクター電極には2.7 kVの電位があるためこの時点で発生した脱離イオンはエクストラクター電極の方に跳ね返される。一方、中性原子は電場の影響を受けないで拡散する。その後、脱離レーザーのパルスから数 $\mu\text{s}$ の遅延時間をおいてイオン化レーザーのパルスと

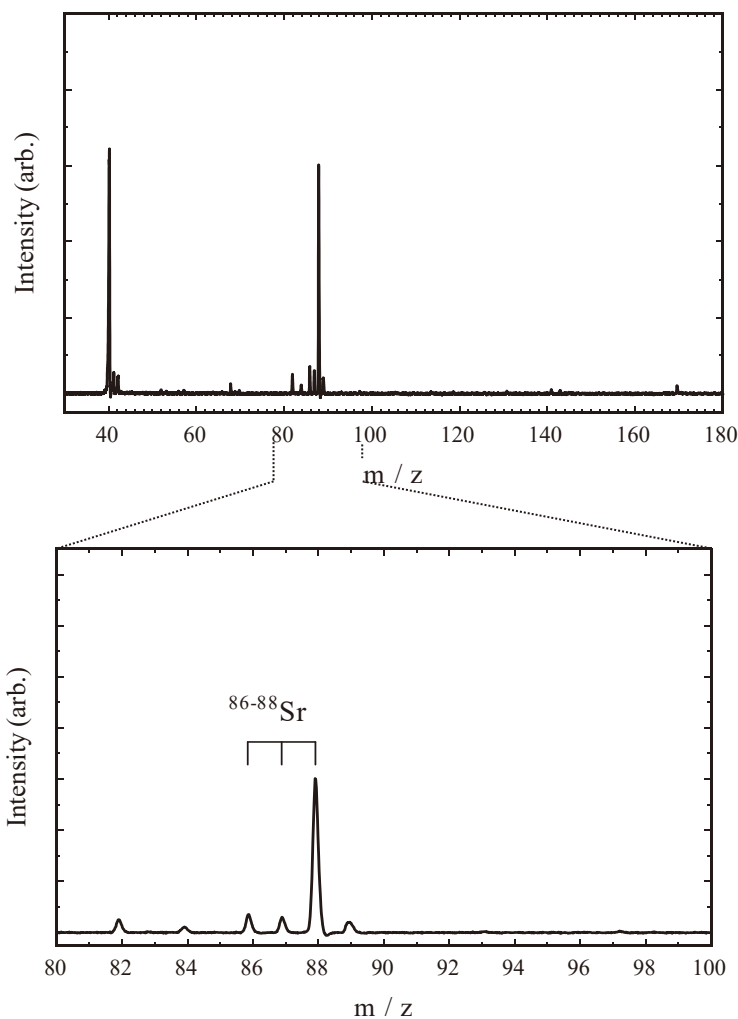


図3. 海水中のSr質量スペクトル

同期してエクストラクター電極に 3 kV の高電圧パルスをかけることにより、イオン化レーザーによりイオン化した中性原子だけが検出器方向に加速されることになる。

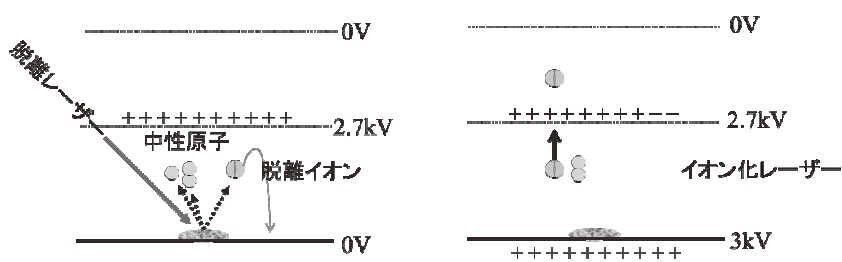


図 5 の B は、この手法で測定したときの TOF 質量スペクトルである。通常の方法で測定した A のスペクトルに現れる、脱離イオンのピーク(矢印で表示)が、きれいに無くなっているのがわかる。

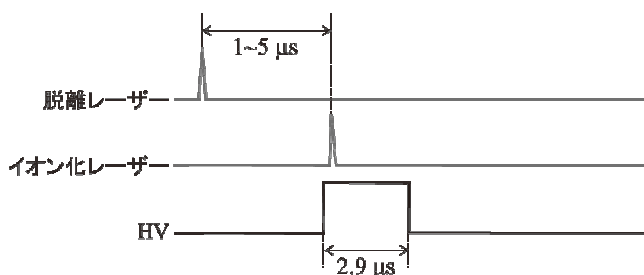


図 4. 遅延パルス加速による脱離イオンの排除

## 7. 結論と今後の展開

レーザーイオン化を利用した高感度の質量分析装置を作成した。この装置の特性としては、試料を直接 TOF 電極を兼ねたサンプルプレートに、長波長(1064 nm)のパルスレーザーをマイルドな条件（非集光、パルスエネルギー10 mJ/pulse 以下）で照射し、気化した試料が拡散する前に電極直上でレーザーイオン化することで、少量の試料で効率よくイオン化できることである。ストロンチウム同位体の簡易分析法として適用したところ、0.1ppm の水溶液が 0.5 μL あれば十分検出できることが分かった。

パルスレーザーを使用しているため、どうしても出力にふらつきがある事から、定量性を持たせることは今のところ困難だが、含有の有無を簡易的に判断するには有効であると考えられる。

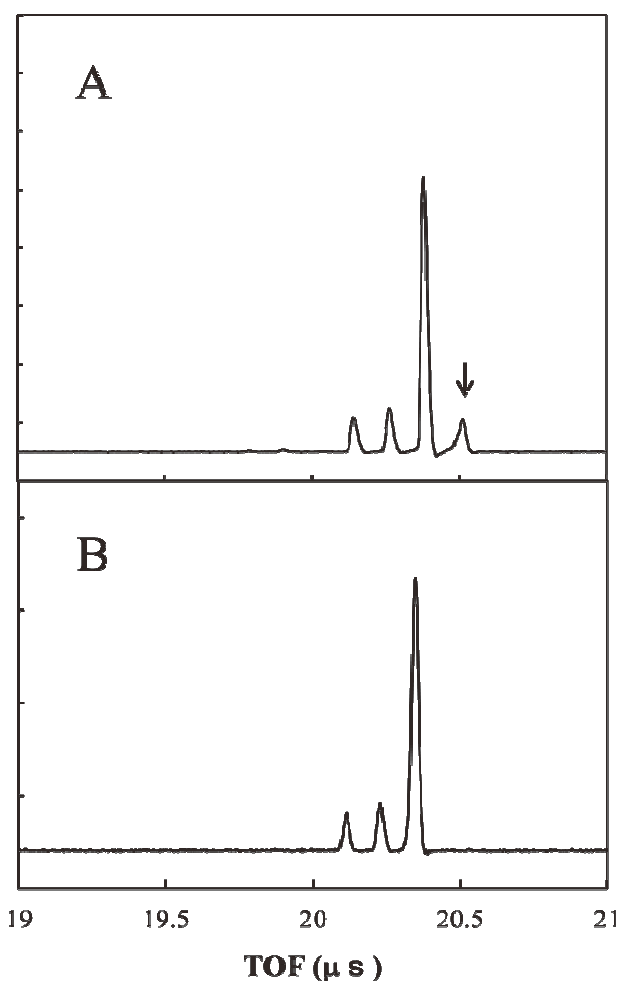


図 5. 遅延パルス加速によるスペクトルの変化

# レーザー共鳴イオン化による超高感度質量分析法の開発：ストロンチウム同位体分析への適用

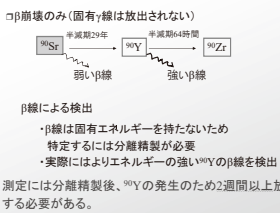
ナノ分光計測研究グループ 永井 秀和

E-mail: nagai-hidekazu@aist.go.jp

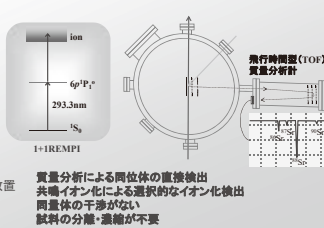
## 研究概要

レーザー共鳴イオン化による質量分析法は、測定対象となる原子や分子を選択的に効率よくイオン化できることから、高感度で高選択的な分析法として知られている。本研究ではこのようなレーザー脱離、共鳴イオン化と飛行時間型質量分析を組み合わせた装置を構築し、ストロンチウムの同位体分析に適用した。測定例として海水をサンプルとした結果を紹介する。

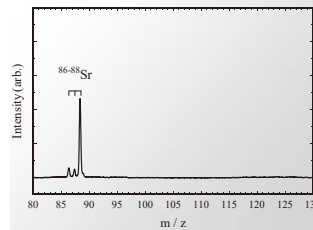
### $^{90}\text{Sr}$ の分析



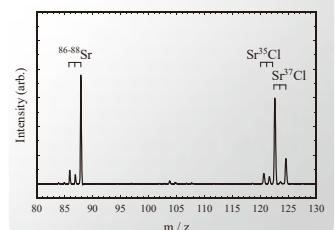
### レーザーイオン化質量分析



### Sr原子の共鳴イオン化 TOF質量スペクトル



### SrCl<sub>2</sub>のLDI質量スペクトル



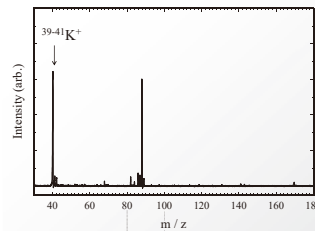
## 測定装置



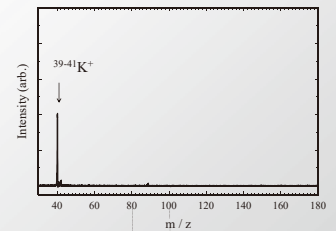
## 海水を試料とした測定

試料採取：茨城県銚田市

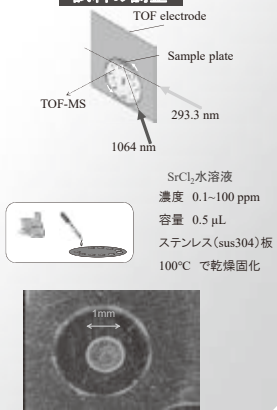
### 共鳴イオン化レーザー有



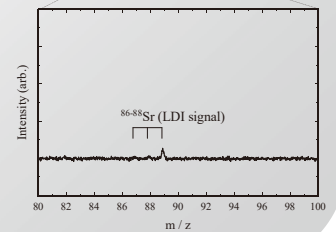
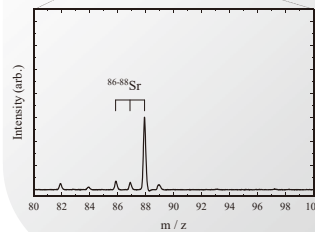
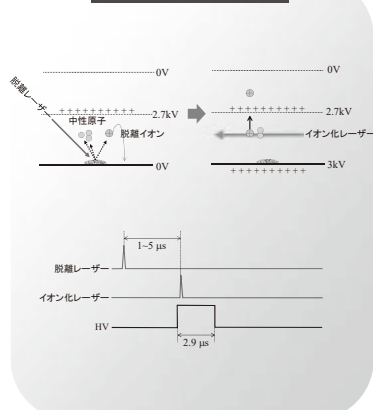
### 共鳴イオン化レーザー無



## 試料の調整



## 遅延引出し



## 結論

塩化ストロンチウムの赤外レーザー脱離イオン化と同時に分解生成するSr原子を共鳴イオン化により検出した。脱離イオンとしてSr<sup>+</sup>およびSrCl<sup>+</sup>の生成を確認した。また、実際に採取した海水の試料を前処理なしで測定し、海水中に含まれるSrの検出に適用した。混合物に由来するピーク特に脱離イオンが強く観測された。イオンの加速にパルス電源を用いてイオン化レーザーのパルスと同期させることで、脱離イオンを除外して観測することができた。

# 半無響室の性能評価における音源の指向性の影響

音響超音波標準研究グループ 山田 桂輔、高橋 弘宜、堀内 竜三

## 要旨

ISO 3745 Annex A は半無響室の性能評価法（音圧の距離減衰特性の測定）を規定しているが、その中で求められる無指向性の音源は現実には入手困難である。そこで我々は、音源の指向性が減衰特性の測定に与える影響の算出法を開発し、音響パワーレベル測定において広く使われている基準音源を音源として利用した場合の影響を検討した。結果として、基準音源は半無響室の性能評価における音源として使用可能であることが示された。

## 1. まえがき

機械製品等から発生する騒音の評価として、音源が放射する総音響エネルギーを表す音響パワーレベルの測定が行われるようになってきている。ISO 3745<sup>1</sup> は音響パワーレベルの精密測定法を規定しており、その中で、測定に用いる半無響室の性能を音圧の距離減衰特性の測定により評価することを求めている。具体的な減衰特性の測定法は ISO 3745 Annex A に規定されているが、その中で必要とされる無指向性の音源は一般に市販されておらず、室の評価のためだけに特別な音源を用意することも現実的ではない。そこで本研究では、音響パワーレベル測定において広く使われている基準音源の利用可能性の検討を目的とし、音源の指向性が減衰特性の測定に与える影響の算出法を開発した。

## 2. 基準音源の指向性

図 1 に本研究で対象とした基準音源を示す。基準音源は音響パワーレベルの比較測定において基準として使用される市販の音源であり、その性能についての要求事項が ISO 6926<sup>2</sup> に規定されている。

基準音源は鉛直方向を軸として回転するファンにより音を発生させているため、水平方



図 1. 基準音源 Type 4204 : Brüel & Kjær



向には無指向性の音源と見なせるが、鉛直方向には指向性を持つ。この鉛直方向の指向性の確認のため、図2に示す音響パワーレベル校正装置を用い、0°から90°の間で音圧の測定を行った。音響パワーレベル校正装置には20個のマイクロホンが半径2mの半球状に螺旋状に配置されており、これに天頂の一点を加えた計21点で測定を行った。

指向性の測定結果を図3に示す。一般的なスピーカ等と比べると指向性は小さいものの、ISO 3745 Annex A に規定されている無指向性音源としての基準値（630 Hz 以下： $\pm 2.0$  dB、800 Hz～5 kHz： $\pm 2.5$  dB、6.3 kHz～10 kHz： $\pm 3.0$  dB）には収まらないことが確認された。

### 3. 逆二乗則からの偏差のシミュレーション

2.で得られた指向性のデータを元に、基準音源の指向性が音圧の距離減衰特性の測定に与える影響をシミュレーションにより検討する。

音圧の距離減衰特性の測定は、測定室の床面中心に設置した音源から壁面に向かう直線上で音圧レベルを測定することにより行われる。理想的な半自由音場では逆二乗則に基づく減衰特性を示すが、壁面からの反射波が存在すると、実際の測定結果と理想的な減衰特性の間には偏差が生じる。半無響室の評価では、この逆二乗則からの偏差が、ISO 3745 Annex A に規定されている許容値（4.に記載）の範囲に収まるかを確認する。

我々は、逆二乗則からの偏差を音源の指向性、部屋の寸法、壁面の吸音率から計算可能なシミュレーション法を開発した。このシミュレーション法は、測定室内のある点における音圧を、指向性を加味した音源からの直接音と、壁面からの反射音の重ね合わせとして

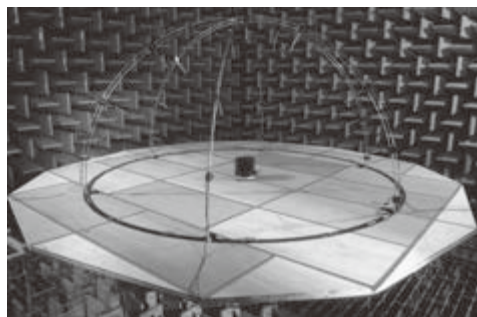


図2. 音源の指向性測定装置。音響パワーレベル測定システムに音源直上の一点を追加

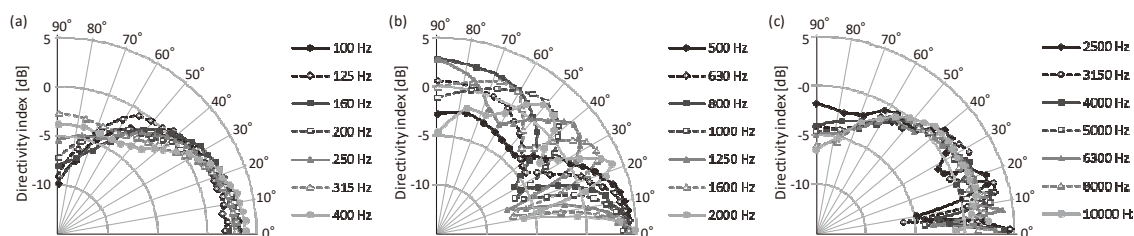


図3. 測定された基準音源の指向性。(a) 100 Hz to 400 Hz, (b) 500 Hz to 2 kHz, (c) 2.5 kHz to 10 kHz

求めるものである。このシミュレーション法を用い、無指向性音源を使った場合の逆二乗則からの偏差と、基準音源を使った場合の逆二乗則からの偏差をそれぞれ計算した。

#### 4. 計算結果

逆二乗則からの偏差の計算結果を図4に示す。計算に用いた半無響室の内寸は幅9.5 m、奥行8.0 m、高さ5.6 mとし、吸音率は半無響室としては極端に低い値として0.95とした。音圧減衰特性の測定経路は床面中心から天井角への長さ8.4 mの経路である。基準音源を用いた場合、逆二乗則からの偏差は周波数により異なるが、図4には無指向性音源を用いた場合の偏差との差が大きかった500 Hz及び1250 Hzにおける偏差を示している。500 Hzでは無指向性音源に比べて最大+0.5 dBの過大評価が、1250 Hzにおいては-0.2 dBの過小評価が起こっている。

ISO 3745 Annex Aに規定されている偏差の許容値は、630 Hz以下： $\pm 2.5$  dB、800 Hz～5 kHz： $\pm 2.0$  dB、6.3 kHz～10 kHz： $\pm 3.0$  dBである。計算に用いた壁面の吸音率は極端に低く設定しており、指向性の影響が出やすいものであったことも考慮すると、実際の半無響室の評価においては、基準音源の指向性の影響は十分に小さいものであると言える。

また、大きさの異なる3つの半無響室(表1)について、無指向性音源を用いた場合の偏差と、基準音源を用いた場合の偏差の差を計算した結果を図5に示す。測定経路は床面中心から天井角への経路、吸音率は0.95とした。計算結果より、室の大きさが変化しても、音源の指向性が音圧減衰特性の測定に与える影響は大きく変化しないことが示された。

以上のように、本研究で開発したシミュレーション法により指向性の影響を検討することで、基準音源を音圧減衰特性の測定用音源として使用可能であることが示された。

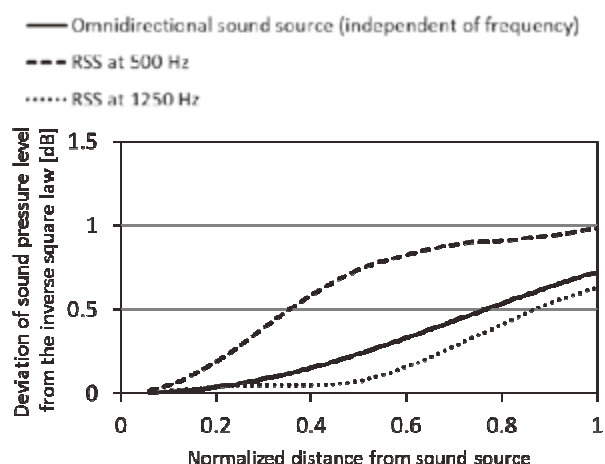


図4. 逆二乗測からの偏差の計算結果.横軸は経路長さで正規化した音源からの距離

表 1. 計算を行った半無響室の内寸

Room identification	Model	Dimensions (width, depth, height)	Measurement path (length, angle)
Room I	Small hemi-anechoic room at NMIJ	5.4 m, 3.8 m, 3.7 m	5.0 m, 48°
Room II	Large hemi-anechoic room at NMIJ	9.5 m, 8.0 m, 5.6 m	8.4 m, 42°
Room III	Large hemi-anechoic room for motorcars at the Japan Automobile Research Institute <sup>3</sup>	24 m, 17 m, 10 m	17.9 m, 34°

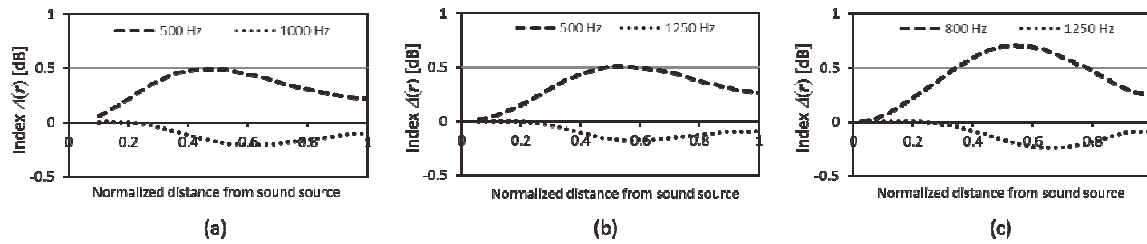


図 5. 無指向性音源を用いた場合の逆二乗測からの偏差と、基準音源を用いた場合の偏差の差。横軸は経路長で正規化した音源からの距離(a) Room I, (b) Room II, (c) Room III

<sup>1</sup> ISO 3745:2012 Acoustics -- Determination of sound power levels and sound energy levels of noise sources using sound pressure -- Precision methods for anechoic rooms and hemi-anechoic rooms.

<sup>2</sup> ISO 6926:2016 Acoustics -- Requirements for the performance and calibration of reference sound sources used for the determination of sound power levels.

<sup>3</sup> S. Yamakoshi and T. Nakano, "A Large Semi-Anechoic Room for Motorcars," J. INCE/J (J), vol.2, pp.27-32, 1978.

# 半無響室の性能評価における音源の指向性の影響

○山田桂輔、高橋弘宜、堀内竜三 音響超音波標準研究グループ

## 1. 研究・開発の背景

ISO 3745は音響パワーレベルの測定に用いる半無響室の性能を、音圧の距離減衰特性の測定により評価することを求めている。しかし、その中で求められる無指向性音源は実際には入手困難である。そこで我々は、音源の指向性が音圧の減衰特性の測定に与える影響の算出法を開発し、市販の基準音源(図1)を音源として使用した場合の影響を検討した

## 2. 研究・開発の内容

音源の指向性、部屋の寸法、壁面の吸音率から、音圧の減衰特性を計算可能なシミュレーションを開発した。このシミュレーションは、測定室内の空間中の音圧を、指向性を加味した音源からの直接音と、壁面からの反射音の重ね合わせとして求めるものである。このシミュレーションを用い、無指向性音源を使った場合の音圧減衰特性と、指向性音源を使った場合の減衰特性をそれぞれ求め、音源の指向性の影響を検討した。



図1：基準音源の例（Type 4204：Brüel & Kjær）。音響パワーレベル測定において基準として用いられる。

## 3. 考察・議論

図2は音圧減衰特性の計算結果を、理想的な逆二乗則からの偏差として示したものである。指向性の影響が大きかった周波数は、500 Hz: +0.5 dBの過大評価、および250 Hz: -0.2 dBの過小評価、であった。ISO 3745 Annex Aに規定されている偏差の許容値は500 Hzでは±2.5 dB、1250 Hzでは±2.0 dBであり、基準音源の指向性の影響は十分に小さいものであると言える。

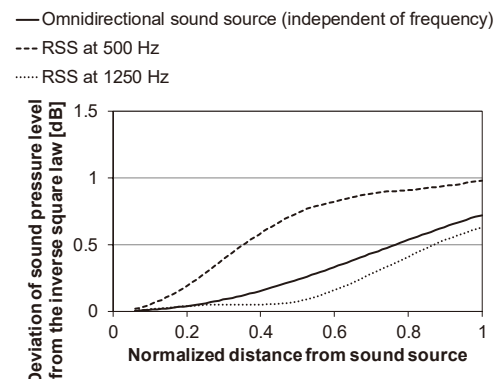


図2：逆二乗測からの偏差の計算結果。半無響室の寸法は幅9.5 m、奥行8.0 m、高さ5.6 m、吸音率0.95。測定経路は床面中心から天井角。

## 4. 結論および今後の展開

本研究で開発したシミュレーションにより指向性の影響を検討することで、基準音源を音圧減衰特性の測定用の音源として使用可能であることが示された。今後は実際の測定により、シミュレーション結果の信頼性を確認していく。

# 厚さ計等工業計測機器に装備される $^{147}\text{Pm}$ の放射能絶対測定

放射能中性子標準研究グループ 佐藤 泰

## 要旨

$^{147}\text{Pm}$  は厚さ計等の工業計測機器に装備される  $\beta$ 線を放出する放射性核種である。産総研では、 $\beta$ 線を放出する核種に対する放射能絶対測定装置として TDCR 装置を開発している。現在までに、 $^3\text{H}$  及び  $^{14}\text{C}$  について放射能標準を確立してきたが、 $^{147}\text{Pm}$  についても放射能標準を確立することができた。今後、TDCR 装置により放射能絶対測定ができる核種を拡大していく予定である。

## 1. はじめに

$^{147}\text{Pm}$  は工業計測機器等に装備される放射性核種である。 $^{147}\text{Pm}$  は半減期 2.6234 年で  $\beta$ 崩壊し、最大 224.1 keV のエネルギーの  $\beta$ 線を放出する<sup>1</sup>。この  $\beta$ 線を利用した工業製品等の例を以下に示す。

### 1.1 厚さ計

厚さ計には、 $\beta$ 線が物質を透過する際、 $\beta$ 線の強度が減弱することを利用する透過法を用いる装置と、 $\beta$ 線が物質で散乱されることを利用する後方散乱法を用いる装置がある<sup>2</sup>。透過法はフィルム、紙等の厚みを測定するのに適した方法であり、後方散乱法は鍍金や塗料のように、 $\beta$ 線が透過しない固体表面を被覆している薄膜の厚みを測定するのに適した方法である。 $^{147}\text{Pm}$ 、 $^{204}\text{Tl}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  等が用いられている。

### 1.2 大気中の浮遊粒子状物質計測器

大気汚染防止法施行規則第十八条第二項において、浮遊粒子状物質は、光散乱法、圧電天びん法又はベータ線吸収法により測定することが定められている<sup>3</sup>。昭和 48 年 5 月環境庁告示第 25 号により、浮遊粒子状物質とは、大気中に浮遊する粒子状物質であって、その粒径が 10 マイクロメートル以下のものと定められており、その環境基準は 1 時間値の 1 日平均値が  $0.10 \text{ mg/m}^3$  以下であり、かつ、1 時間値が  $0.20 \text{ mg/mm}^3$  以下であること、と定められている<sup>4</sup>。大気中の浮遊粒子状物質計測器としては、ほぼすべての測定局でベータ線吸収法による装置が用いられている。光散乱法では、浮遊粒子状物質の大きさや色等による補正に欠点があり、圧電天びん法では装置を洗浄しなければならない欠点があるので、補正がより容易で検出器の洗浄が不要なベータ線吸収法が選択されている。ベータ線吸収法は、濾紙に捕集された浮遊粒子状物質による  $\beta$ 線の減弱により、浮遊粒子状物質の質量を測定するものである。 $^{147}\text{Pm}$ 、 $^{14}\text{C}$  等が用いられている。

### 1.3 $\beta$ 線吸収線量標準\*

放射線を放出する同位元素の数量等を定める件第二十条第二項第四号において、皮膚の等価線量は  $70 \mu\text{m}$  線量当量と定められている<sup>5</sup>。ここで、 $70 \mu\text{m}$  線量当量とは、人体表面から  $70 \mu\text{m}$  深さにおける個人線量当量であり、 $\beta$ 線吸収線量等から計算されるものである。同告示第六条第 2 項により皮膚の 4 月 1 日を始期とする 1 年間について等価線量限度は 500



mSv と定められている<sup>5</sup>。さらに、同告示第 5 条により、放射線業務従事者の実効線量限度が 4 月 1 日を始期とする 1 年間について 50 mSv に定められている等、いくつかの条件下での実効線量限度が定められている<sup>5</sup>。ここで、吸収線量は電離放射線によって物質に与えられるエネルギーであり、単位は Gy である<sup>6</sup>。等価線量は、組織又は臓器に対する被ばくの効果を評価するために使用される量であり、組織又は臓器における平均吸収線量に放射線荷重係数を乗じたものである<sup>6</sup>。単位は Sv である。実効線量は被ばくした組織又は臓器の等価線量に、その組織荷重係数を乗じて合計した値である<sup>6</sup>。単位は同じく Sv になる。皮膚の等価線量を管理するため、個人線量計が用いられているが、この線量計を校正するためには、 $\beta$ 線吸収線量の標準照射場が必要である<sup>7,8</sup>。この標準照射場の  $\beta$ 線源として  $^{147}\text{Pm}$ 、 $^{85}\text{Kr}$ 、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  等が用いられている。

\*本項において、 $\beta$ 線とは  $\beta$ 線のことである。一般的に  $\beta$ 線吸収線量と表現されている。

#### 1.4 その他、現在では製造されていない製品

蛍光灯を点灯するためのグロースタータの電極に  $^{147}\text{Pm}$  等が用いられていた。 $^{147}\text{Pm}$  等から放出される  $\beta$ 線を利用してグロー放電が引き起こされていた。しかし、蛍光灯はインバータ方式が主流になり、さらには、蛍光灯が LED 照明に置き換えられつつある。電源表示ネオンランプにも  $^{147}\text{Pm}$  等が使われていたが、これも LED に置き換えられた。夜光時計の夜光塗料に  $^{147}\text{Pm}$  等使われていたが、現在は蛍光塗料に置き換えられている。

#### 1.5 原子力電池

$^{147}\text{Pm}$  から放出される  $\beta$ 線を電源にする原子力電池が現在でも研究されている<sup>9,10</sup>。原子力電池としては、放射線のエネルギーを熱エネルギーに変換して、この熱を熱電変換素子等で電気に変える方法や、放射蛍光物質で放射線を光に変換して太陽電池に照射する方法、pn 接合に  $\beta$ 線を照射して起電させる方法、カンチレバーにピエゾ素子を接合し、さらにカンチレバー近傍に  $\beta$ 線源を設置することにより、カンチレバーの振動を電気に変換する方法が研究されている。 $^{147}\text{Pm}$  の他、 $^3\text{H}$ 、 $^{63}\text{Ni}$ 、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 $^{238}\text{Pu}$  等が検討されている。 $^{238}\text{Pu}$  については、宇宙探査機の電源として用いられていることが有名である。

## 2. $\beta$ 線放出核種の放射能絶対測定法及び装置

TDCR (Triple to Double Coincidence Ratio) 法は、 $\beta$ 線放出核種や EC 崩壊核種に対する放射能絶対測定法である<sup>11, 12</sup>。放射能絶対測定法とは、標準線源を用いずに放射能測定が行える方法であり、逆に標準線源を校正する方法でもある。TDCR 法は液体シンチレーションカウンターによる放射能測定法の一つであり、放射性溶液を液体シンチレータと混合してバイアルに封入したものを線源とする。この線源から放出されるシンチレーション光を、3 本の光電子増倍管で検出する。三本の光電子増倍管で光を同時検出した時の計数率と二本の光電子増倍管で光を同時検出した時の計数率の比を TDCR 値とし、これを指標とする。

図 1 に産総研で開発された TDCR 装置を示す。また、TDCR 装置のブロック図を図 2 に示す。光電子増倍管でシンチレーション光を電気パルスに変換し、コンスタントフラクシオンディスクリミネータで電気ノイズと放射線によるパルスを弁別する。デッドタイムジ

ェネレータにより、パルスが入力された後、一定時間パルス出力がされないようにする。これにより、アフターパルスという一つのパルスに随伴する小さなパルスを除去することができる。ファストコインシデンスにより、二本同時検出の場合と、三本同時検出の場合のみ、それぞれに対応するカウンターにパルスを出力し、計数を行う。線源の周囲に光学フィルタを設置し、計数効率を変えながら測定を行い、複数の実験データを得る。

この計数値から得られる二本同時計数率と三本同時計数率を用い、産総研で開発した、TDCR 値-計数効率平面上でのフィッティングを行う<sup>13, 14</sup>。計数効率は、放出されるβ線のエネルギー分布、シンチレーション光の発光効率や、光電子増倍管への入射効率、光電子増倍管で入射光子が増倍される確率などに影響されるが、これらを考慮してフィッティングすることにより放射能を求めることができる。

これまで、<sup>3</sup>H と <sup>14</sup>C について本法を適用してきたが、今回 <sup>147</sup>Pm についての測定を行った。

### 3. TDCR 法による <sup>147</sup>Pm の測定

<sup>147</sup>PmCl<sub>3</sub> 溶液 0.03 mL と純水 0.97 mL 及び Ultima Gold™ (Parkin Elmer) 液体シンチレータ 15 mL を 3 本の 20 mL バイアルに封入し混合した。光電子増倍管の印加電圧は、計数率の飽和により 1900 V とした。デッドタイムジェネレータによる不感時間は 20 μs とし、麻痺型の不感時間とした。ファストコインシデンスの分解時間は 50 ns とした。測定時間は 500 s とし、測定を 3 回繰り返した。典型的な二本同時計数率は 1000 cps から 1200 cps であった。フィッティングの結果を図 3 に示す。得られた放射能は 42.10 ± 0.40 kBq/g (k=2) であった。この結果は、従来国家標準として用いられてきた方法、即ち液体シンチレーションカウンタ PerkinElmer Tri-carb 3110TR により線源を測定し、測定データを CIEMAT-NIST 法で計算して放射能を得る方法による結果 42.08 ± 1.35 kBq/g (k=2) と不確かさの範囲内で一致するとともに、不確かさを改善した結果となった。

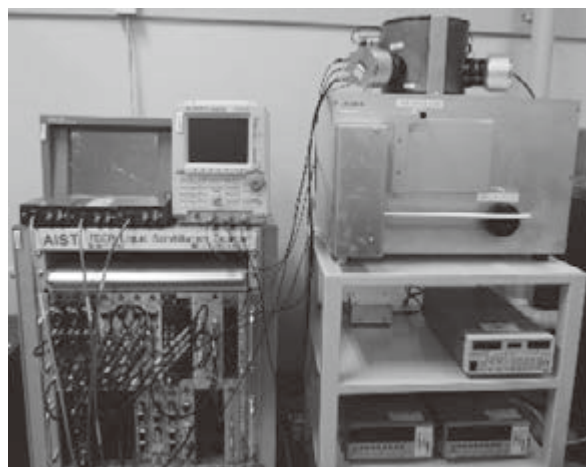


図 1. 産総研にて開発した TDCR 装置

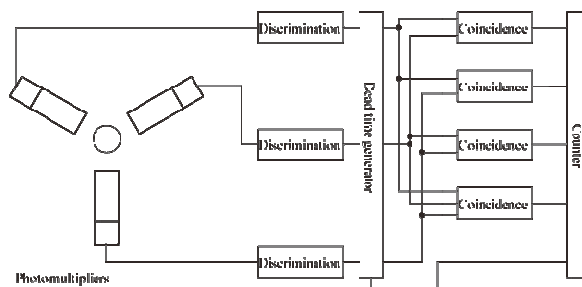


図 2. TDCR 装置のブロック図

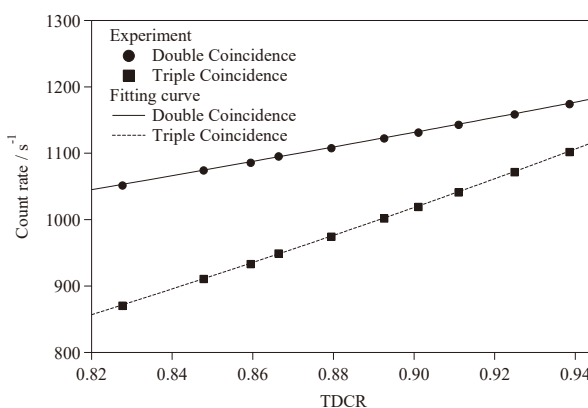


図 3. 実験値に対するフィッティングの結果

#### 4. まとめ

TDCR 装置により  $^{147}\text{Pm}$  の放射能絶対測定を行い、従来の国家標準の値と不確かさの範囲内で一致する結果を得た。今後、 $^{147}\text{Pm}$  の放射能校正、 $^{147}\text{Pm}$  を用いた液体シンチレーションカウンタの校正については、TDCR 装置により行う予定である。また、TDCR 装置の適用範囲を拡大していく予定である。

<sup>1</sup> V. Chisté and M. M. Bé, Monographie BIPM 5, 7, 95(2013).

<sup>2</sup> Manual on NUCLEAR GAUGES, IAEA (1996).

<sup>3</sup> 昭和 46 年厚生省・通商産業省令第一号(1971).

<sup>4</sup> 昭和 48 年 5 月環境庁告示第 25 号(1973).

<sup>5</sup> 平成 12 年 10 月科学技術庁告示第 5 号(2000).

<sup>6</sup> JIS Z 4001(1999).

<sup>7</sup> M. Kato, AIST Bulletin of Metrology, 3, 4, 633 (2005).

<sup>8</sup> M. Kato, AIST Today, 2, 29 (2008).

<sup>9</sup> A. Waris et al., AIP Conference Proceedings, 1719, 030053 (2016).

<sup>10</sup> A. Kavetskiy et al., Appl. Radiat, Isot. 69, 744 (2011).

<sup>11</sup> R. Broda, et al., Appl. Radiat, Isot. 39, 159 (1988).

<sup>12</sup> P. Cassette and J. Bouchard, Nucl. Instrum. Meth. A 505, 72 (2003).

<sup>13</sup> Y. Sato, et al., Appl. Radiat. Isot., 70, 2184 (2012).

<sup>14</sup> Y. Sato, Radioisotopes, 67, 5, 221 (2018).

# 厚さ計等工業計測機器に装備される $^{147}\text{Pm}$ の放射能絶対測定

佐藤泰 放射能中性子標準研究グループ

## 1. はじめに

$^{147}\text{Pm}$ は工業計測機器等に装備される放射性核種である。 $^{147}\text{Pm}$ は半減期2.6234年で $\beta^-$ 崩壊し、最大224.1 keVのエネルギーの $\beta^-$ 線を放出する。厚さ計や、大気中の浮遊粒子状物質計測器、 $\beta^-$ 線吸収線量標準の $\beta^-$ 線源として利用されている。

## 2. TDCR法

TDCR (Triple to Double Coincidence Ratio) 法は、 $\beta^-$ 線放出核種やEC崩壊核種に対する放射能絶対測定法である。液体シンチレータと放射性溶液を混合した線源から放出される $\beta^-$ 線由来のシンチレーション光を、3本の光電子増倍管で検出する。三本の光電子増倍管で光を同時検出した場合の計数率と二本の光電子増倍管で光を同時検出した場合の計数率の比をTDCR値とし、これを指標とする。

## 3. $^{147}\text{Pm}$ の放射能絶対測定

$^{147}\text{PmCl}_3$ 溶液0.03mLと純水0.97mL及びUltima GoldTM (Parkin Elmer)液体シンチレータ15mLを3本の20mLバイアルに封入し混合した。光学フィルタにより、計数効率を変えて測定し、測定データに対して、シンチレーション光の発光過程や検出過程を考慮したフィッティングを行った。得られた放射能は $42.10 \pm 0.40$  kBq/g ( $k=2$ )であった。

## 4. 今後の展開

今後、 $^{147}\text{Pm}$ の放射能校正、 $^{147}\text{Pm}$ を用いた液体シンチレーションカウンタの校正については、TDCR装置により行う予定である。

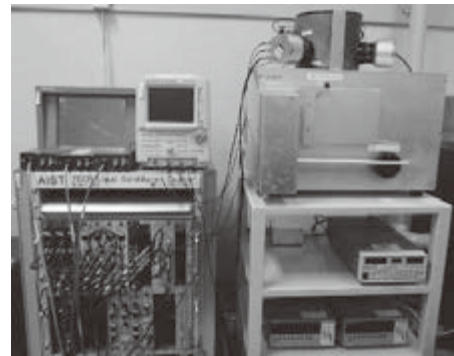


図1 産総研にて開発したTDCR装置

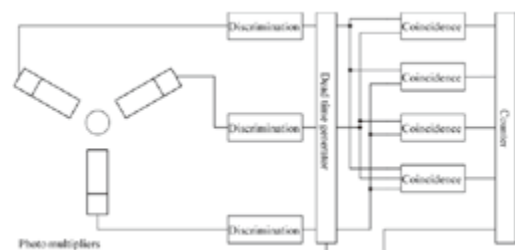


図2 TDCR装置のブロック図

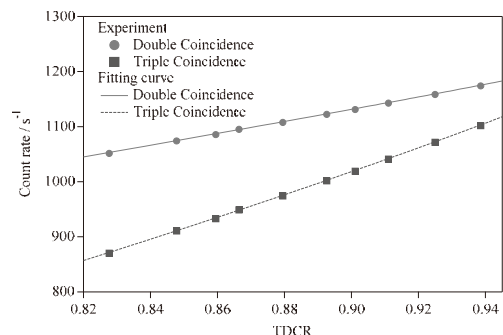


図3 実験値のフィッティング

# 水晶振動子型水素センサ・濃度計の屋外計測での安定性改善

ナノ顕微計測研究グループ 鈴木 淳

## 要旨

水晶振動子型水素センサ・濃度計を屋外計測に用いる際に問題となる屋外環境変化に対する変動を抑制するため、圧力及び回路部温度の変化に対する校正を行った。これらの校正の結果、24 時間での変動率が抑制され、安定性が改善された。以上の結果は日が異なっても定性的には同様であり、水晶振動子型圧力センサ・濃度計の屋外計測において圧力校正とともに回路部の温度校正を行うことにより 24 時間の変動率を水素センサとして必要な 0.3 %以下と、安定性の面で実用化レベルの安定性を得た。

## 1. はじめに

水晶振動子型水素センサ・濃度計では測定する気体の粘性計測が可能な水晶振動子を測定子として用いることにより、水素漏洩検知及び大気中の水素濃度を計測する<sup>1</sup>。この水晶振動子型水素センサ・濃度計は高速応答、高濃度計測対応、室温計測など数々の利点を持っているが、水素エネルギー社会での実用化を考える際、解決すべき問題が存在する。水素エネルギー社会において実際に水素漏洩検知及び水素濃度を測定する場所として想定されるのは、水素製造所や水素貯蔵所、燃料電池車などである<sup>2</sup>。これらの場所は屋外が多く、その場の気圧、温度、湿度などが変化する。水素漏洩検知をリアルタイムに行うためには水素濃度の変化以外の影響を低減すること、理想的には完全に排除することが望ましい。しかしながら水晶振動子型水素センサ・濃度計での計測においては、その出力が圧力、温度及び湿度の影響を受ける。なぜならこのセンサ・濃度計の出力である水晶振動子の共振回路のインピーダンスは、本質的に圧力によって変化するからである<sup>3</sup>。また、水晶振動子の共振周波数が温度に依存することから、間接的に共振回路のインピーダンスも影響される<sup>4</sup>。さらに湿度変化は大気中の水分量の変化であるから、それによる粘性が変化することにより結果的にセンサ・濃度計の出力も変化する。以上の出力の変化は、水素漏洩や水素濃度の変化と区別がつかないため、誤報の原因となりうる。したがって、特に水素漏洩のリアルタイム検知のためにはこれら屋外の圧力、温度、湿度の影響を排除する必要がある。その方法として、ここでは圧力、温度の変化による出力の変化を別途計算により求め、それを測定値から相殺することによって圧力や温度の影響を排除する方法について検討した。なお、これまでの研究の結果、湿度の影響については他と比較して小さいことがわかっているため、今回は校正から外した。

## 2. 屋外計測

本研究で用いた水晶振動子型水素センサ・濃度計は現状では測定子である水晶振動子とこれに接続するプリアンプから成る図 1 に示すような構成の機器である。水晶振動子としては温度変化に対する出力の変化が小さい温度安定型の水素振動子を用いている。このた



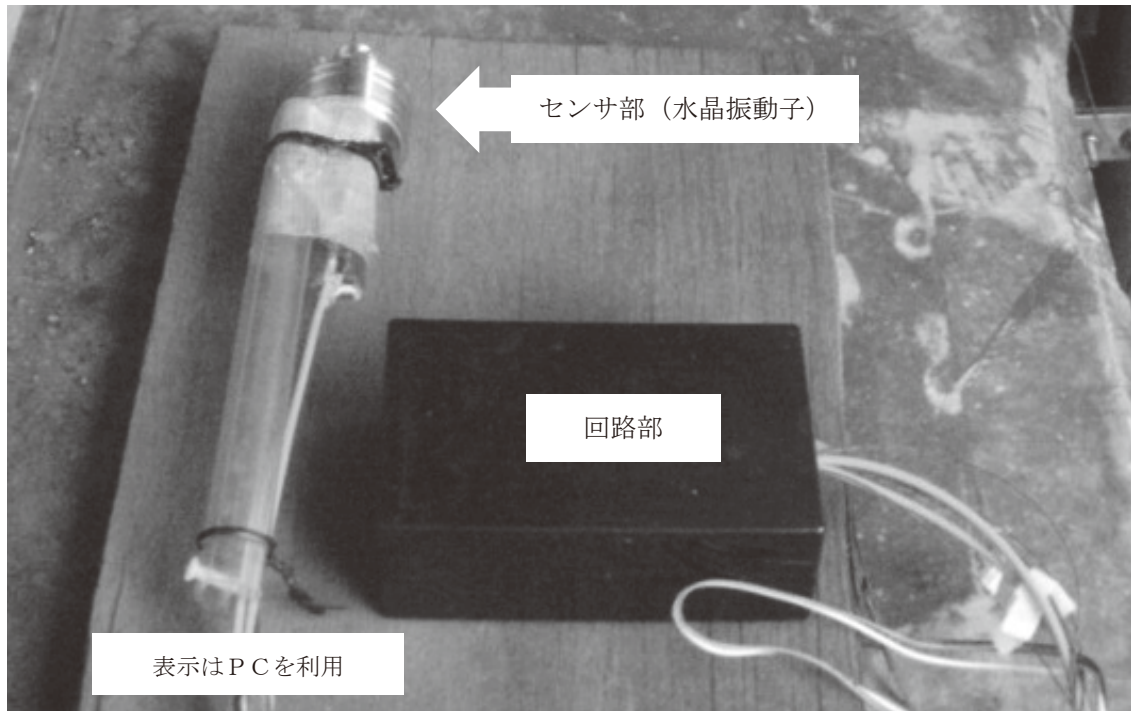


図 1. 水晶振動子型水素センサ・濃度計の外観

め、水晶振動子自体への温度の影響はほぼ無視できる<sup>5</sup>。しかしながらこれに接続する図 1 の回路部は温度の影響を受け、出力が変化する<sup>6</sup>。

今回、回路部温度の影響を低減するため、水晶振動子型水素センサ・濃度計のセンサ部のみを室外のほぼ北側の軒下に設置し、回路部は温度 25 °C に設定した室内に分離して設置した。またこれによる計測と同時に付近の気圧、温度、湿度を環境表示計 (HD2001.1TC1.5、株式会社サカキコーポレーション) で、回路部温度を回路上に設置した薄膜白金測温抵抗体 (FK2 22、ヘレウス株式会社) からの電圧出力で測定した。

図 2 に、ある一日の深夜 0 時から測定した水晶振動子型水素センサ・濃度計の出力の時間変化を示す。なお、出力としては上述の共振回路のインピーダンスを電圧に変換したものをを用いた。校正前の値を見ると、ほぼ日の出からの気温上昇と共に出力が増加するなど、気温の影響が大きいように見受けられる。実際、出力と圧力、気温、湿度のそれぞれの相関を比較すると気温の影響が一番大きい。なおこの気温の影響は上述したように水晶振動子そのものへの影響ではなく、接続している回路部への影響によるところが大きい。

図 2 における校正前の出力変化の大きさを、1 日の出力の平均値に対する最大値から最小値を差し引いた最大差を変動率として定義して評価する。ここで定義した変動率は、これまでの研究との比較により、水素漏洩時の漏洩水素濃度にほぼ等しいことがわかっている。例えば図 2 の校正前出力においては、最大値 2.227 V、最小値 2.216 V、平均値 2.222 V であるから、最大差は 0.011 V となり、変動率は 0.49 となる。すなわちこの結果では 1 日の中で 0.49 vol. % 濃度の水素が漏洩したのと同様な変化が計測されていることになる。現状最低限必要とされている水素濃度検知下限が 1 vol. % であることを考慮すると、この大き

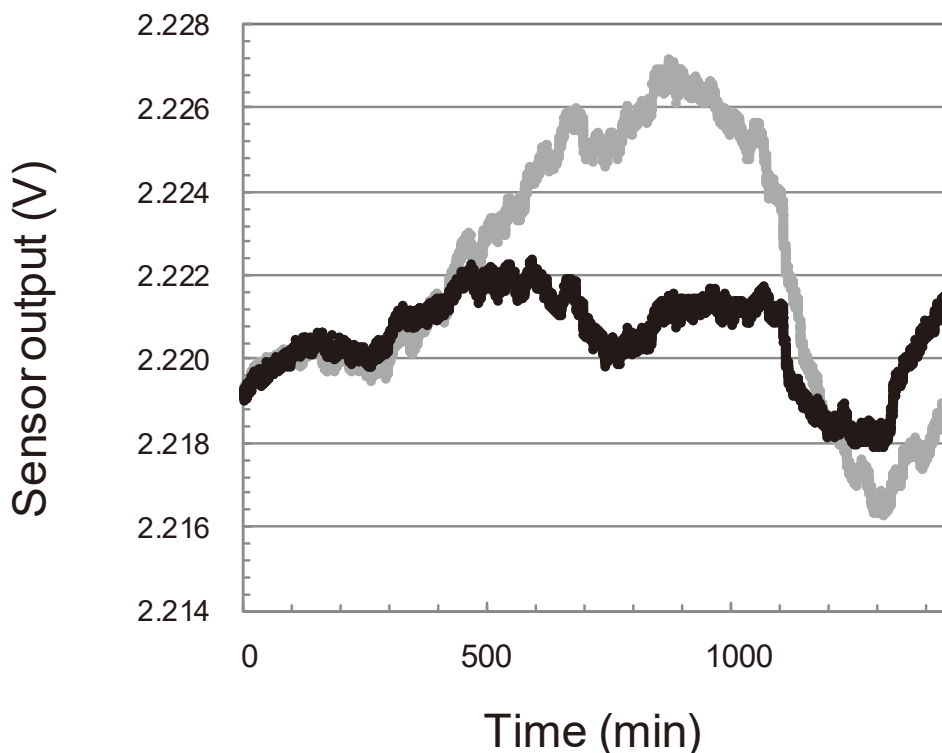


図 2. 屋外計測での水晶振動子型水素センサ・濃度計の校正前（灰）後（黒）の出力変化

さは無視できない大きさであり、水素の有無に関係なく起こった変化によって、水素漏洩を検知したのと同様の出力となり、結果水素漏洩の誤報となってしまいます。したがってこのような、屋外環境の変化による出力の変化は極力抑制する必要があります。ここでは変動率を必要水素濃度検知下限の 1 vol. %の約三分の一程度である 0.33 vol. %以下に抑制することを目標とした。

### 3. 校正方法

環境変化による水晶振動子型水素センサ・濃度計の出力変化を抑制するための校正方法として、ここでは圧力及び回路部温度に対する変化の校正を行うこととし、具体的にはそれぞれの変化に対する出力の変化を求め計測値から相殺することによって校正した。

圧力及び回路部温度の変化によって出力がどのくらい変化するかについては、あらかじめそれらの依存性を調べておくことによって計算で求められる。例えば圧力を同時測定しておけば圧力変化分を用いて出力の圧力依存性から圧力変化分に対する出力変化が計算で求められるから、この値を実際の測定値から差し引くことにより圧力校正が可能である。また、回路部温度についても同様な方法で校正できることから、例えば測定値に圧力校正を行った値である圧力校正値に対して回路部温度の校正を行うことにより圧力及び回路部温度による校正が可能になる。

それぞれの依存性を他の条件を一定にして求めたところでは、出力の圧力依存性は逆比例となり、回路部温度依存性はほぼ比例関係であった。以上の関係からここでは初期の圧

力及び回路部温度に対する変化を同時計測により求め、それぞれの依存性の式に代入することにより圧力及び回路部温度の変化分に対する出力の変化を計算で求め、実際の計測値出力から差し引いた。

以上の校正により、図 2 の 24 時間の計測値に対する校正後の結果に示すように、校正前の結果と比較して変動率が抑制された。校正後の変動率の値は水素濃度換算で 0.20 vol. %であり、目標とした 0.3 以下を達成できており、屋外計測での実用上十分な安定性が得られた。

#### 4. まとめ

以上の結果を含む現状の水晶振動子型水素センサ・濃度計の仕様一覧を表 1 に示す。今回の校正により屋外でもその環境変化に影響されず、安定した計測が可能であることが明らかとなり、より実用化に近づけることができた。

今回のシンポジウムではユーザーなどとの意見交換をすることがなかったが、今後は以上の校正方法を行うために必要な圧力・温度を測定する環境センサを持ち、校正を行う演算装置を搭載することにより屋外測定の実用上十分な水晶振動子型水素センサ・濃度計のプロトタイプを作製してユーザー評価へと繋げていく。

最低検知下限 (大気圧)	0.1 %
測定可能水素濃度範囲	0.1 – 100 %
測定水素濃度分解能	0.1 %
応答速度	1 秒以下
動作温湿度範囲	10 – 200 °C (センサ耐温 300 °C)、0 – 100 %RH
24 時間安定度	0.33 % (水素濃度換算で 0.33 vol. %相当) 以下
動作圧力範囲	数 Pa – 大気圧以上
動作温度	室温 (加熱不要)
センササイズ	1 mm × 1 mm × 4 mm
その他の利点	水素の反応が介在しないため安全に測定できる 酸素など他のガスが不要 水素ガス以外のガスによる擾乱がほとんど無い 省電力 (数 $\mu$ W) で動作する

表 1. 現状の水晶振動子型水素センサ・濃度計の仕様一覧

<sup>1</sup> A. Suzuki and H. Nonaka, Int. J. Hydrogen Energy **33**, 6385 (2008).

<sup>2</sup> 産業タイムス社, 水素エネルギー企業 ハンドブック, 2016.

<sup>3</sup> K. Kokubun, M. Hirata, H. Murakami, Y. Toda and M. Ono, Vacuum **34**, 731 (1984).

<sup>4</sup> L. Spassov, E. Yossifov, V. Georgiev and L. Vergov, Sens. Actuators, A **58**, 185 (1997).

<sup>5</sup> A. Suzuki, J. Vac. Sci. Technol. A **34**, 031604 (2016).

<sup>6</sup> A. Suzuki, J. Vac. Soc. Jpn. **59**, 96 (2016).

# 水晶振動子型水素センサ・濃度計の 屋外計測での安定性改善

○鈴木 淳 ナノ顕微計測研究グループ

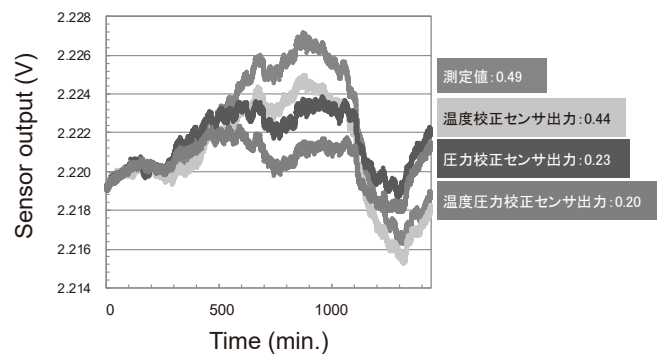
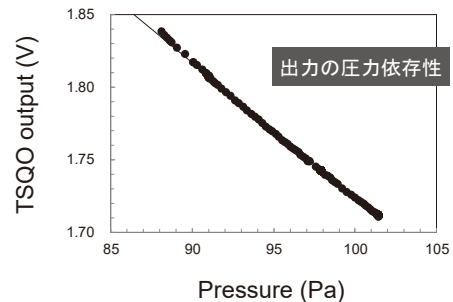
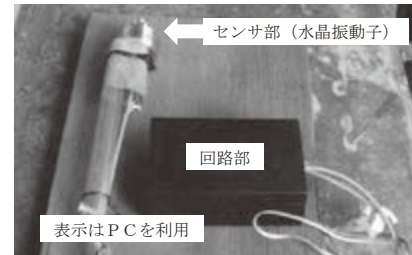
## 1. 研究・開発の背景

- 実用化のためには屋外計測での環境変化による出力の変動の抑制が必要。
- 具体的には水素濃度以外の出力変動が、水素センサの必要検知下限の3分の1である水素濃度0.33vol.%の変化以下にすることが求められる。

## 2. 研究・開発の内容

- 安定性改善の方法として、環境変化に対する出力の変化量を求め、実測値から差し引くことで環境による変化を相殺する。
- 上記の環境変化に対する変化量は、圧力や温度を同時に実測すれば、別途測定した出力の圧力依存性や温度依存性により計算で求められる。
- 以上の圧力校正及び温度校正を行った結果、屋外計測での出力の安定性が改善された。

装置構成



## 3. 仕様一覧

- 屋外計測での安定性の改善により実用化に必要な性能をほぼ満たす仕様を持つ水素センサ・濃度計が作製可能なことがわかった。

## 4. 結論および今後の展開

- 屋外計測での安定性が実用化レベルにまで改善された。
- プロトタイプを作製、ユーザー評価を行った上で実用化に繋げていく。

最低検知下限 (大気圧)	0.1%
測定可能水素濃度範囲	0.1-100%
測定水素濃度分解能	0.1%
応答速度	1秒以下
動作温湿度範囲	10-200°C (センサ耐温 300°C)、0-100% RH
動作圧力範囲	数 Pa - 大気圧以上
動作温度	室温 (加熱不要)
センササイズ	1mm×1mm×4mm
その他の利点	水素の反応が介在しないため安全に測定できる 酸素など他のガスが不要 水素ガス以外のガスによる擾乱がほとんど無い 省電力 (数 μW) で動作する

URL: <http://unit.aist.go.jp/rima/>

# 位相コントラスト法を用いた X 線検査装置の開発

放射線イメージング計測研究グループ 安本 正人  
健康工学研究部門 セラノスティックデバイス研究グループ 三澤 雅樹

## 要旨

20 keV 程度のエネルギーの X 線で低密度物質を検査する方法として、Talbot-Lau 干渉計を用いた高感度 X 線検査装置の開発を目指している。この Talbot-Lau 干渉計を実現するために、高精細で高アスペクト比な X 線回折格子を光学設計し、UV リソグラフィ法などを用いて製作した。

## 1. はじめに

X 線検査装置は、リアルタイムに非破壊で、食品への異物混入や製品不良を検査することができて、安全・安心な社会を実現するために重要な役割を果たしている。そのための X 線イメージング方法として、X 線透過撮影（ラジオグラフィ）、X 線 CT、3D/4D 計測などいろいろな方法が実用化されている。近年は、さらに低密度物質（ガラス、骨など）への検出能力の向上を目指した高機能型 X 線検査装置が求められている。

ラジオグラフィ法はサンプルによる X 線吸収量の大小を画像化するので、低密度物質は画像化するのが難しい。そこで、吸収量の変化ではなくて、X 線の位相変化を測定することによって画像化する方法がある。本研究においては、測定物による位相変化を抽出する方法として、“タルボ・ロー（Talbot-Lau）干渉光学系”を用いた。<sup>1</sup> われわれは、その現場に導入可能な X 線検査装置の光学設計及びその干渉光学系を構成する最も重要な光学素子である X 線回折格子について研究を行っている。

## 2. タルボ干渉型 X 線検査装置

開発を目指している位相コントラスト法を用いた X 線検査装置の全体概念図を図 1 に示す。工場の製造・検査ラインに組み込まれることを想定して、比較的コンパクトな X 線管球と複数枚の X 線透過回折格子群（Talbot-Lau 干渉計）、半導体 2 ラインセンサーから構成されている。これらによって、大面積での検査が可能となり、スピーディーな検査に対応できるように設計されている。

このタルボ干渉型 X 線検査装置では、位相型回折格子（G1）、振幅型回折格子（G0、G2）の 2 種類の回折格子で構成している。試料を通過して位相変化した X 線と最下流の回折格子とのモアレ縞を半導体ラインセンサーで計測する。得られたモアレ縞に信号処理（フーリエ変換など）を行って、サンプルの位相分布画像を得ることができる。



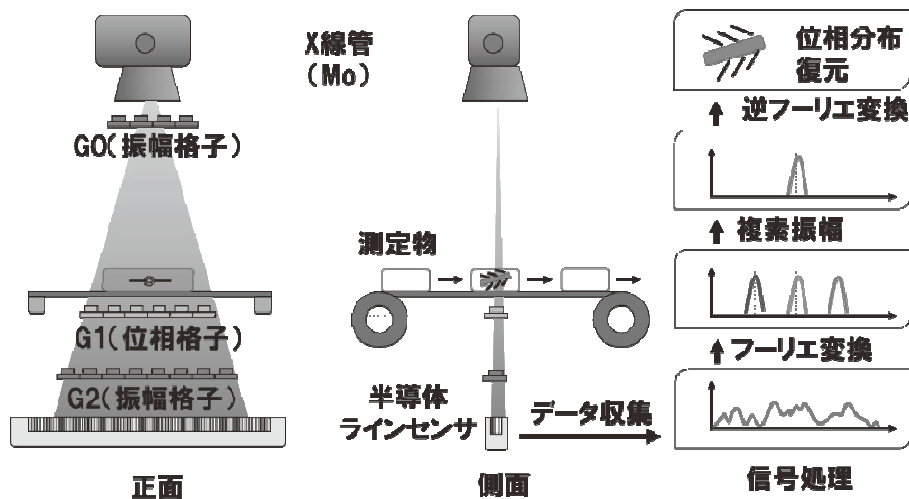


図 1. 位相コントラスト法を用いた X 線検査装置の概念図

### 3. X 線回折格子

#### 3. 1 回折格子設計

X 線透過回折格子は、X 線が透過部分と非透過部分を周期的に構成するものである。X 線が非透過するためには原子番号の大きい金属であることが有利である。コンパクトな Mo 管球を光源とした X 線検査装置を想定しているため、Mo の特性 X 線エネルギー（～17.5 keV）を中心に実用的な格子配置でタルボ干渉条件を満たすためには、格子周期が数ミクロンであることが必要である。

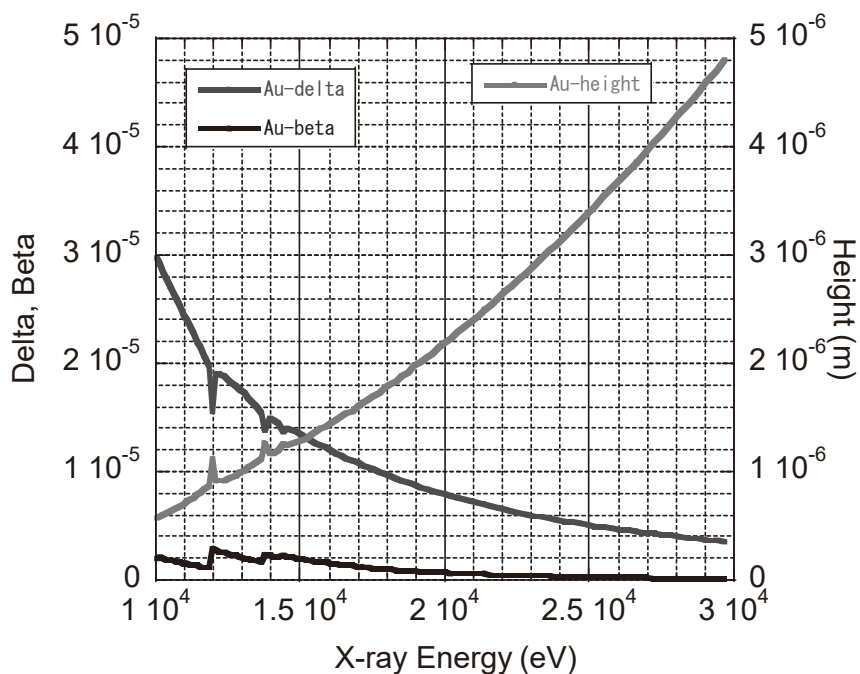


図 2. 位相型回折格子の高さ

図 2 に、金製位相型回折格子の場合の X 線エネルギーと高さの関係（計算値）を示す。

X線エネルギーが 17.5 keV では、位相格子として働くように金製回折格子の高さが 1.7  $\mu\text{m}$  であることが分かった。

図 3 に、X線エネルギー17.5 keV での金属部分の透過率と高さの関係（計算値）を示す。振幅型回折格子（格子の明暗で 1/100 の透過率比）の場合、金（Au）の場合は $\sim 22 \mu\text{m}$ 、ニッケル（Ni）の場合は $> 100 \mu\text{m}$  の高さが必要であることが分かった。

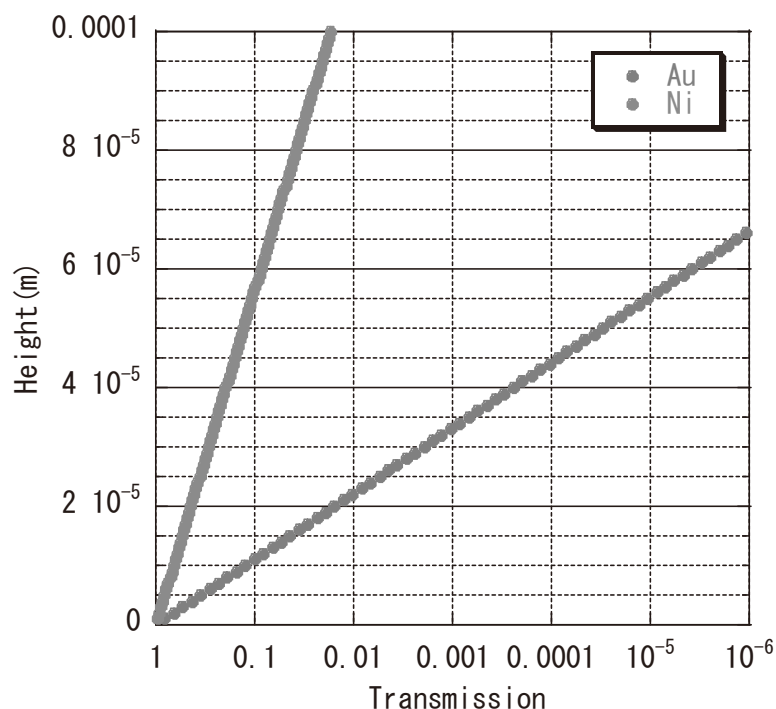


図 3. 振幅型回折格子の高さ

以上のタルボ干渉条件から、X線検査装置用の回折格子（G0、G1、G2）の設計値を表 1 に示す。

表 1. X線検査装置用回折格子の仕様

格子の種類	G0	G1	G2
周期 [ $\mu\text{m}$ ]	14.2	5.0	7.7
金属/空隙 [ $\mu\text{m}$ ]	7.1/7.1	2.5/2.5	3.8/3.8
高さ [ $\mu\text{m}$ ]	22.2	1.7	22.2
アスペクト比	3.1	0.7	5.8
材質	Au	Au	Au
基板	4 in.Si(t=0.2 mm)	4 in.Si(t=0.2 mm)	4 in.Si(t=0.2 mm)
有効面積	20×20 mm	50×50 mm	60 mm(直径)

### 3. 2 回折格子製作

高精細でアスペクト比の高い回折格子の作製方法はいくつかの方法が試みられている。

UV リソグラフィなど半導体製造装置利用や X 線リソグラフィを用いたいわゆる LIGA プロセスなどがある。<sup>2</sup> われわれは、汎用性の高い前者のプロセスを利用して、この X 線透過用回折格子を作製した。本研究では、産業技術総合研究所内にある共同利用施設である「産総研ナノプロセッシング研究施設 (AIST-NPF)」にある半導体製造装置群を用いて、回折格子の作製を行った。具体的には、Si ウエハ上に塗布したレジストに、UV 露光装置を用いて微細構造をパターンニングし、めっき工程を使って格子金属 (Au) を作製した。図 4 には作製した金 (Au) 製 X 線回折格子 (中心部の 50 mm 角) の全体写真を示す。また、図 5 には回折格子部分を拡大した電子顕微鏡写真を示す。

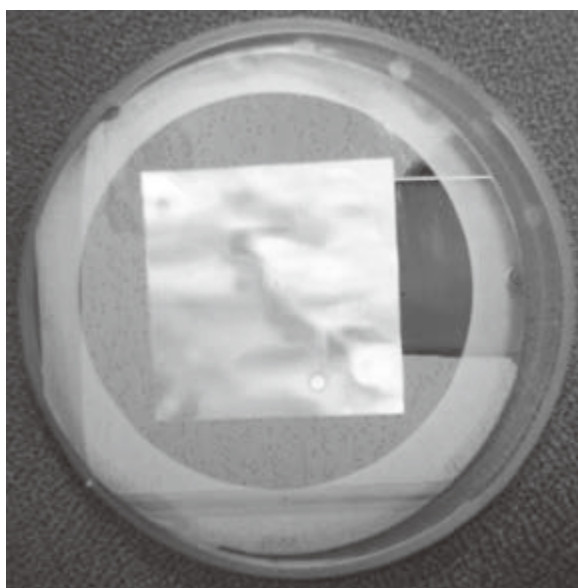


図 4. 金製回折格子全体写真

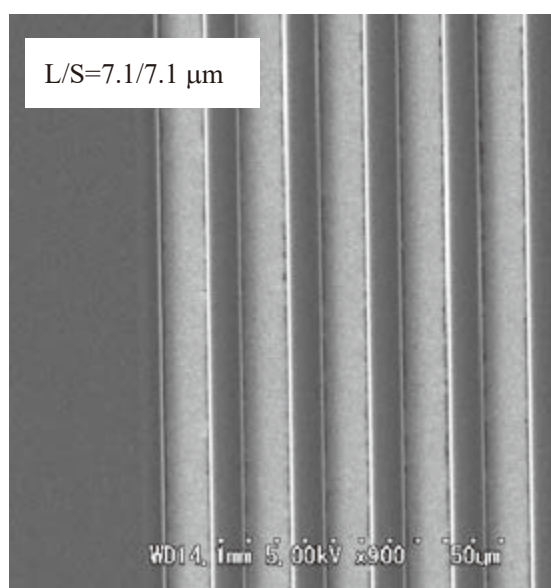


図 5. 回折格子の電子顕微鏡写真

#### 4. まとめと今後の展開

位相コントラスト型 X 線検査装置を想定した位相型回折格子、振幅型回折格子を用いた Talbot-Lau 干渉計を使った X 線検査装置、回折格子の光学設計及び製作を行った。今後は、X 線エネルギーを変えることによる利用分野の拡大や回折格子の大面積化、製作プロセスの単純化などを行って、さらに応用展開を図る。

(謝辞) 本研究の一部は、文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム」事業の支援を受けて、(国研) 産業技術総合研究所ナノプロセッシング研究施設において実施されました。また、本研究の一部は「佐賀県リーディング企業創出支援事業」(平成 28~30 年度) の助成を受けたものがある。

<sup>1</sup> A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 42, 1866 (2003).

<sup>2</sup> T. J. Schröter et al., Rev. Sci. Instrum. 88, 015104 (2017).

# 位相コントラスト法を用いたX線検査装置の開発

○安本正人<sup>1</sup>、三澤雅樹<sup>2</sup>

分析計測標準研究部門 放射線イメージング計測研究グループ<sup>1</sup>

健康工学研究部門 セラノスティックデバイス研究グループ<sup>2</sup>

## 1. 研究開発の背景と目標

X線検査装置は、検査物内部を非接触、非侵襲で観察できる特長を持っている。一方、その高い透過性から十分にコントラストを上げることができず、検査物中の内部構造の可視化が難しい面がある。そこで、位相コントラスト法を用いたX線検査装置の開発を目指して、その光学設計とX線回折格子の開発を行っている。

## 2. 研究開発の内容

### (1) X線タルボ干渉計の構築

X線回折格子を用いたタルボ干渉光学系を利用した、X線検査装置を構築して、測定物中の透過するX線の位相変化を測定する(図1参照)。

### (2) X線用金製回折格子の作製

UVリソグラフィ法を用いて、数 $\mu\text{m}$ 周期の金製X線回折格子(50mm角)を作製した(図2参照)。

## 3. 結論および今後の展開

タルボ干渉光学系を利用したX線検査装置用回折格子デバイスの開発を行った。今後は、更に回折格子の大面積化、LIGAプロセスへの応用、格子製作プロセスの簡素化を行って、実用化を図る。

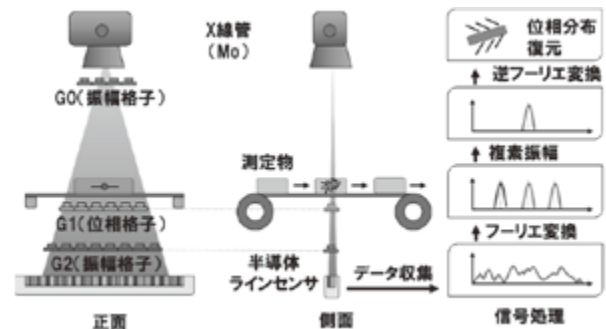


図1. X線検査装置の概念図

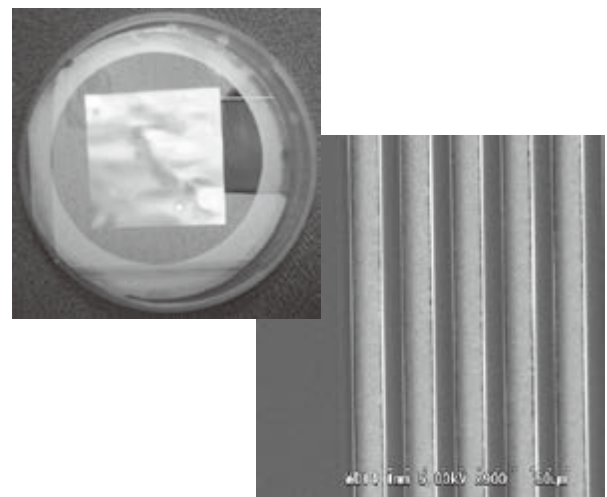


図2. X線回折格子  
(光学顕微鏡写真と電子顕微鏡写真)

## 超近接配置欠陥の非破壊による分離判定評価

非破壊計測研究グループ 山本 哲也、伊東 峻也、叶 嘉星、遠山 暢之  
株式会社ベテル ハドソン研究所 栗野 孝昭、大槻 哲也、森 猪一郎、関口 誠

### 要旨

パルスレーザーにより励起された超音波の伝搬現象をその場でほぼリアルタイムに計測・再現して、実構造物や各種部材に内在する欠陥を高速診断できるレーザー励起超音波検査システムの研究開発を当グループで行っている。試験片を伝搬する超音波を可視化することで超音波非破壊検査に関する専門的知識を有していなくても容易に欠陥診断を行うことができることが本手法の特徴の一つである。本シンポジウムでは、当グループで行っているレーザー走査による超音波伝搬現象映像化探傷手法について、測定対象の範囲拡大の取り組み状況について紹介する。特に、極めて近接して配置された微小欠陥の映像化による分離判定評価に関して議論する。

### 1. はじめに

パルスレーザーにより励起された超音波の伝搬現象をその場でほぼリアルタイムに計測・再現して、実構造物や各種部材に内在する欠陥を高速診断できるレーザー励起超音波検査システム（図1）の研究開発を当グループで行っている<sup>1,2</sup>。本検査システムは、レーザーにより励起された超音波を可視化（動画像表示）することにより欠陥検出を行う手法であり、従来から一般的に行われている試験片からの複雑な波形（信号）成分から欠陥検出を行う超音波探傷技術と比較して、欠陥判定において専門的な経験や技能が不要であり、複雑形状部材の検査も短時間で行うことが可能である。

本システムでは、パルスレーザーを試験片表面に照射して熱励起超音波を発生させ、レーザー照射点を格子状に高速走査しながらもう1点に配置されたセンサで受信した超音波信号を収録する。それらの収録信号を再構成することで、超音波が伝搬する様子を映像化することができる。ここで、もし試験片に欠陥が存在すれば波紋状に広がる欠陥エコーが伝搬映像として観察できるので、超音波非破壊検査に関する専門的な知識や経験がなくても欠陥診断が可能となる。本装置を用いた映像化により、これまでサブミリオーダーまでの極めて微小な欠陥検出を実現しており、本装置の高いポテンシャルが既に実証されている。本装置は既に産総研発ベンチャーを介して製品化されており、国内外への販売実績を有している。

著者らは、これまで当該技術における測定対象に対する適用範囲の拡大として、大面積試験片（1 m 角のアルミ板）における欠陥評価や極めて長い距離（3 m）伝搬後の映像評価、炭素繊維複合材料（CFRP）直交積層板における超音波の伝搬挙動、複数センサを同一の試験片に同時に適用した際の映像化等の各種検討を重ねてきた。複数の欠陥を有する試験片の探傷に関しては、これまで欠陥中心間距離 5 mm 離れて配置された直径 4 mm の大き



さの円形貫通孔を有する試験片の映像化について、その2か所からの散乱現象が別々なものとして視認できることを確認してきた<sup>3</sup>。本シンポジウムでは、当該手法の一環として、より微小な欠陥が極めて近接して配置された試験片の映像化を行った際に、それらの欠陥からの散乱現象が別々の映像として認識することが可能かどうかに関して検討を行うものとする。

## 2. 測定手順

レーザー励起超音波映像化システムの概略を図1に示す。なお、当グループでは、送信・受信ともに非接触で計測を行うことのできる完全非接触型のレーザー探傷システムについても既に導入・検討を行っているが、ここでは従来の接触型のセンサを用いたシステムについて記述する。パルスレーザーを試験片表面に照射して熱励起超音波を発生させ、レーザー照射点を格子状に高速走査しながら、もう1点に配置された探触子（センサ）で伝搬してきた信号（波形）を受信する。ここで、信号の励起（送信点）に関しては、試験片表面上のある特定の検査範囲（複数点）についてレーザー走査により行い、信号の受信（受信点）に関しては、あらかじめ1点に定められた（固定された）探触子により行う。機器類（レーザー、ミラー、高速A/D変換器等）については、LabVIEW<sup>®</sup>により作成したソフトにより同期制御を行い、受信した波形データは、低雑音増幅器、フィルタ、高速A/D変換器を介してパソコンに保存する。それらの信号を再構成することで、超音波が伝搬する様子を映像化することができる。実際の測定においては、上記のようにレーザーにより超音波を励起し固定点での探触子において信号の受信を行っているのであるが、波動伝搬の相反性を利用することで、受信点である探触子から発信された超音波の伝搬状況を動画像としてモニタ上に表示させて欠陥判定を行うことになる。

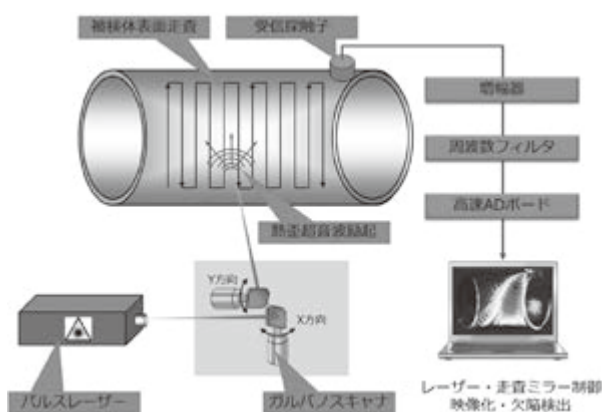


図1. レーザー励起超音波検査システム

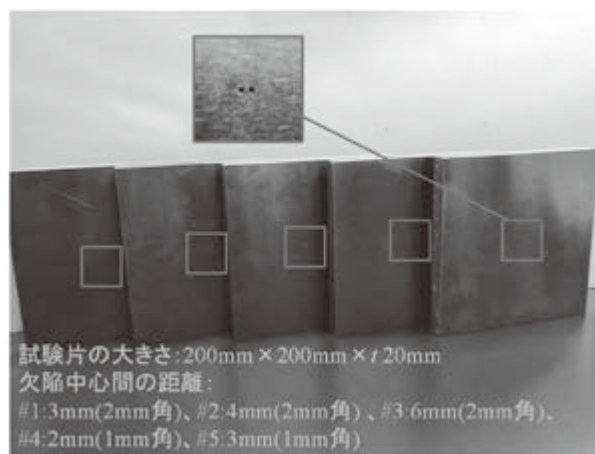


図2. 近接配置された欠陥を有する試験片と欠陥付近の拡大図

表 1. 近接配置された欠陥を有する試験片のパラメータ

試験片番号	#1	#2	#3	#4	#5
欠陥の大きさ	2 mm 角	2 mm 角	2 mm 角	1 mm 角	1 mm 角
欠陥中心間距離	3 mm	4 mm	6 mm	2 mm	3 mm

### 3. 測定結果及び考察

図 2 に、今回用意したアルミ試験片を示す。大きさ 200 mm×200 mm×*t* 20 mm の中央に方形の微小欠陥（欠陥数 2）が極めて近接して配置されている厚板試験片を 5 種類用意した。この各種試験片における欠陥のパラメータに関して表 1 に示す。欠陥の大きさとしては、当装置を用いて現状でサブミリサイズまでの判別が可能であることを確認しているが、散乱現象がある程度明瞭に確認できることを想定して、1 mm 角と 2 mm 角の欠陥を用意した。欠陥中心間距離としては、表 1 に示す通り 1 mm 角欠陥に関しては 2 mm と 3 mm で、2 mm 角欠陥に関しては 3 mm、4 mm、6 mm の 3 種類を用意した。この 5 種類の試験片の中で、まずは、欠陥からの映像が最も明瞭に確認できるであろう、2 mm 角の欠陥が最も離れて配置（中心間距離 6 mm）された試験片#3 を用いて映像化を試みることにした。

具体的な測定手順（条件）としては、レーザーの正面に欠陥を手前にして試験片を配置し、センサ（探触子）に関しては試験片上部に配置してレーザー照射を行った。なお、ガルバノミラーからターゲットまでの距離は 270 mm とし、信号の受信に関しては、斜角 90 度の 1 MHz のコンポジット探触子を用いた。レーザー照射点数は 203 ポイント×203 ポイントであり、低周波ノイズ除去のためハイパスフィルタ 500 kHz を介してデータを受信した。この時の映像化結果（スナップショット画像）を図 3(a)に示す。図 3(a)に示されるように、欠陥が手前にある場合には 2 か所の欠陥からの散乱現象をクリアに確認することができていることが分かる。次に、探傷現場におけるより現実的な例として欠陥が試験片の裏側にある場合を想定し、欠陥の存在する面がレーザー照射面とは反対の面（裏側）となるように試験片を置き換え、その他の条件は上記とほぼ同じものとして測定を行った。ガルバノミラーからターゲットまでの距離は同じく 270 mm とし、センサ（探触子）に関しては、2 MHz の斜角 45 度のコンポジット探触子を試験片上部に配置してデータの受信を行った。レーザー照射点数は同じく 203 ポイント×203 ポイントであり、ハイパスフィルタも同様に 500 kHz を適用している。この時の映像化結果を図 3(b)に示す。この場合においても、クリアという訳ではないが同様に 2 か所の欠陥からの散乱現象を確認することができている。前回の考察<sup>3</sup>では、欠陥中心間距離が 5 mm で配置された 2 か所の円形孔からの欠陥の映像化の判別が可能であることを示したが、その際は円形孔が貫通したタイプであることと、その欠陥の直径が 4 mm という比較的大きなタイプの欠陥であったため、散乱現象の映像化が比較的容易であったといえる。一方、今回は欠陥中心間距離が 6 mm であるが、欠陥の大きさは 2 mm 角で貫通していないタイプであり、さらに欠陥が手前にある場合のみならず、探傷現場におけるより現実的なケースに近い、裏側に欠陥が存在するケースにおいても 2 か所からの散乱現象を確認できており、より当該手法の適用範囲拡大の進展に貢献できたものと考えられる。

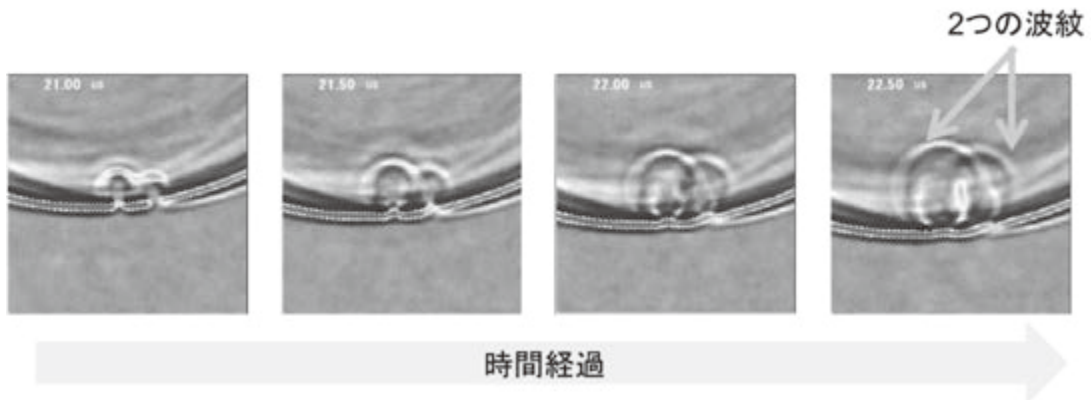


図 3(a). 欠陥を手前に配置して測定した際の映像化結果（スナップショット画像）

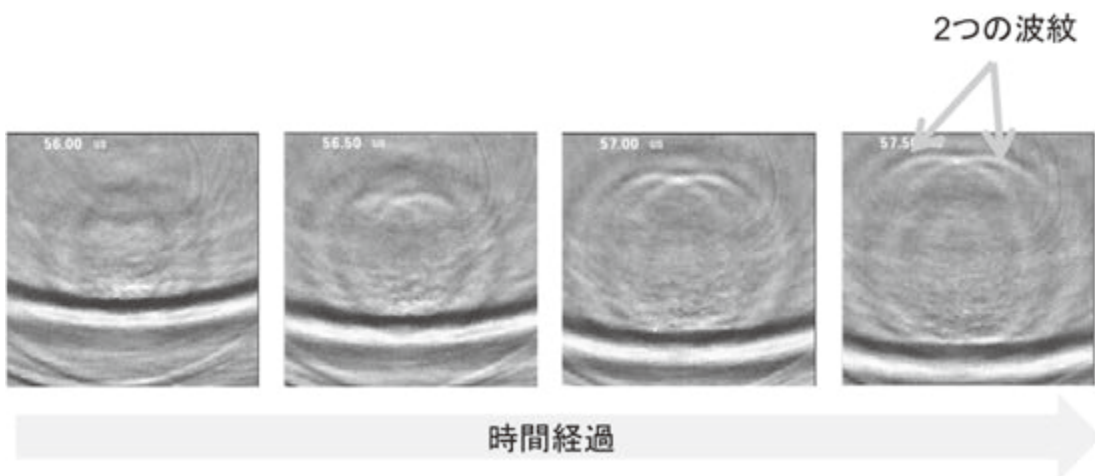


図 3(b). 欠陥を裏側に配置して測定した際の映像化結果（スナップショット画像）

#### 4. むすび

極めて近接して配置された欠陥に対しても適切に2か所からの映像化の様子を確認することに成功した。今回は、用意した5種類の試験片の中で、欠陥サイズが最も大きく（2 mm 角）、欠陥中心間距離が最も離れた（6 mm）場合の試験片を使用して映像化を行ったが、今後は、より欠陥中心間距離の近い場合や、より小さい1 mm 角の欠陥を有する試験片に対して検討を開始する予定である。また、当グループでは、AI等の機械学習を適用した自動判定手法の研究も行っている。本稿の欠陥が裏側に存在した際の映像に見られるような、あまりクリアではない映像をより明確に判別するには、AI等の画像判定手法の適用が大いに期待される。

<sup>1</sup> 高坪, 非破壊検査, **57**(4), 162 (2008).

<sup>2</sup> 遠山他, 日本複合材料学会誌, **43**(5), 201 (2017).

<sup>3</sup> 山本他, 2016 年度計量標準総合センター成果発表会, (2017).



# 超近接配置欠陥の非破壊による分離判定評価

○山本哲也<sup>1</sup>、伊東峻也<sup>1</sup>、叶嘉星<sup>1</sup>、遠山暢之<sup>1</sup> 非破壊計測研究グループ<sup>1</sup>  
栗野孝昭<sup>1,2</sup>、大槻哲也<sup>2</sup>、森猪一郎<sup>2</sup>、関根誠<sup>2</sup> 株式会社ベテル ハドソン研究所<sup>2</sup>

## 1. 研究・開発の背景

超音波探傷技術は、(1)複雑形状物体の検査が難しい、(2)検査に時間がかかる、(3)欠陥検出精度が悪い、(4)欠陥判定にかなりの専門性が必要、などといった課題がある。これらの課題を解決する新しい検査手法として、当グループでは、レーザー励起超音波をその場でほぼリアルタイムに計測・解析して、実構造物や各種部材に内在する欠陥を高速検査できるレーザー励起超音波検査システムの研究開発を進めている。

## 2. 適用範囲拡大の検討

著者らはこれまで当該技術における適用範囲の拡大として、大面積(1m角)試験片における欠陥評価や極めて長い距離(3m)伝搬後の映像評価、複数センサを同時に適用した際の映像化、超微小欠陥(サブミリレベル)の欠陥判定可能性等の各種検討を重ねてきた。本シンポジウムでは、当該手法の一環として、極めて近接して欠陥が配置された際に、本手法を適用してそれらの欠陥が別々なものとして評価することが可能かどうかに関して検討を行うものとする。

## 3. 測定手法及び結果

図2に、今回用意した試験片を示す。大きさ200mm×200mm×t 20mmの中央2か所に方形の微小欠陥が極めて近接して配置されている厚板試験片について検討を行った。なお、欠陥の大きさとしては、1mm角と2mm角の欠陥を用意した。

図3に、2mm角の欠陥が中心間距離6mm離れて近接配置された試験片を用いて映像化を行った結果を示す。上図と下図は、それぞれ手前と裏側に欠陥を有する場合の映像化結果(スナップショット画像)である。センサに関しては試験片の上部手前(レーザー照射側)に配置した。これらの結果から、欠陥が手前にある場合、2か所からの散乱現象を明瞭に確認することができた。一方、裏側に欠陥を有する場合、クリアという訳ではないが同様に2か所からの散乱現象を確認できている。

## 4. むすび

極めて近接された欠陥に対して、適切に2か所からの散乱現象を確認することに成功した。より明瞭に判別するにはAI等の画像判定手法の適用が待たれる。

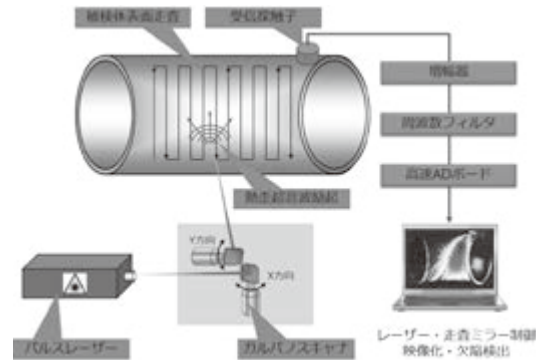


図1. レーザー励起超音波検査システム

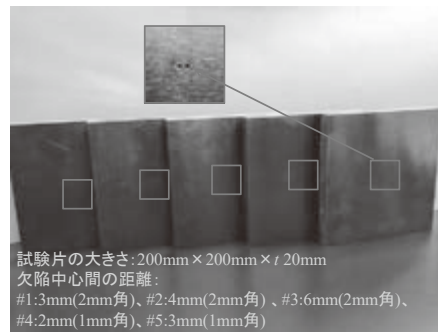


図2. 近接配置された欠陥を有する試験片と欠陥付近の拡大図

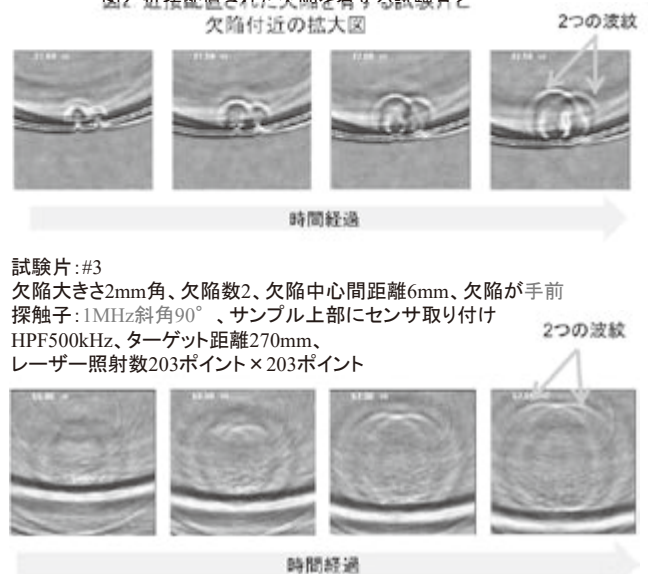


図3. 映像化結果(スナップショット画像)

URL: <http://unit.aist.go.jp/rima/>

# 超微小領域における欠陥分布の可視化技術

非破壊計測研究グループ 王 慶華、李 志遠、津田 浩

## 要旨

原子欠陥の定量検出は、製品の品質改善のプロセスを探るのに非常に重要である。本研究では、広視野での原子配列の欠陥分布を可視化して検出するために、フーリエ変換フィルタリングされたサンプリングモアレ技術を提案した。結晶構造の電子顕微鏡画像から、原子配列の欠陥分布、欠陥数および欠陥密度を低コストで可視化に測定することができた。提案手法の有効性を数値シミュレーションにより検証した。また開発した画像処理技術を窒化ガリウム半導体の透過電子顕微鏡画像に適用し、転位分布と転位密度の定量的な評価に成功した。開発した技術を用いて処理プロセスが転位分布に及ぼす影響を評価することで、欠陥の少ない高性能・長寿命な半導体デバイスの製造プロセスの確立への貢献が期待される。

## 1. はじめに

近年、半導体の性能・寿命を保証するため、半導体デバイスの製造時に発生する構造欠陥を精密に制御するプロセス技術の確立が求められている。原子レベルの欠陥は、従来、透過電子顕微鏡 (TEM) で撮影された高分解能原子配列画像を目視で観察して評価していたが、高倍率にするほど視野が狭くなるため、原子スケールの分解能で、広い領域にわたって原子欠陥を評価することは非常に時間と手間が掛かっていた。そこで本研究では、電子顕微鏡画像から欠陥の分布を容易に評価できる画像処理技術を開発した。この画像処理を半導体デバイスの透過電子顕微鏡画像に適用したところ、画像全体で転位の分布を自動的に評価することに成功した。<sup>1,2</sup>

## 2. 研究方法

材料の結晶や周期的構造物の欠陥に対し、フーリエ変換フィルタ、ダウンサンプリングモアレ法、空間位相シフト技術の組み合わせによるフーリエ変換フィルタ処理されたサンプリングモアレ技術を提案した。<sup>1</sup> この画像処理技術は結晶の原子配列を規則的な格子と見なし、フーリエ変換によりノイズを除去し、サンプリングモアレ法からモアレ縞を生成する。生成されたモアレ縞は結晶格子を拡大した模様に相当することから、格子に変形をもたらす欠陥の一種である転位が存在する箇所ではモアレ縞に不連続点が現れ、画像認識技術を利用して容易に転位箇所を検出できる。

開発した技術により材料の結晶または周期構造の欠陥位置を正確に検出できることを実証するため、図 1 から図 3 までに示すシミュレーションを行った。図 1 に示すように、2次元格子を X 軸格子と Y 軸格子に分離することができる。図 2 は Y 軸格子からの欠陥検知における提案手法の検証シミュレーションである。



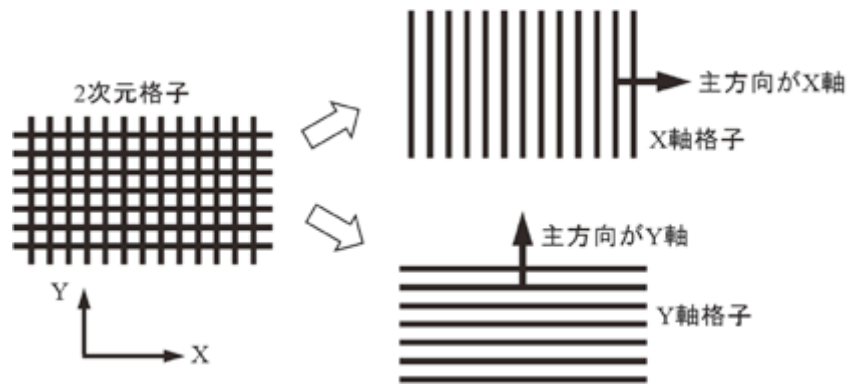


図 1. 2次元格子（周期構造）の主方向の定義

図 2(a)に示す、4つの予め定められた転位を有する交叉格子を、 $1000 \times 900$  ピクセルで生成する。格子間隔は、Y 軸に 40 ピクセル前後、X 軸に 24 ピクセル前後である。格子内に、主軸 Y を有する全 4 つの転位を与える(Y 軸格子)。図 2(b)に、試験環境のシミュレーションに際し、当格子画像に  $\sigma=200\%$  のガウシアンノイズ(ノイズ振幅が格子振幅の 200%)を加えた画像を示す。透過型顕微鏡 (TEM) において結晶以外のノイズが観察されることから、このシミュレーションにおいてもノイズを付加した。

図 2(c)に、中心点上方に最初の回折点を選び 2次元 FFT と逆 2次元 FFT(フィルタ処理)を実施した後に得られる当格子画像の Y 軸格子の画像を示す。図 2(d)に、サンプリング間隔が 30 ピクセルの場合に同画像から生成される空間位相シフトモアレ縞を示す。各モアレ縞から視覚的に転位が観測できる。

位相シフトアルゴリズムにより、図 2(e)に示す、位相シフト前におけるモアレ縞の位相分布が観測される。図 2 中の 4 つの円で示すように、モアレ位相マップから 4 つの転位位置を検知できることが検証された。

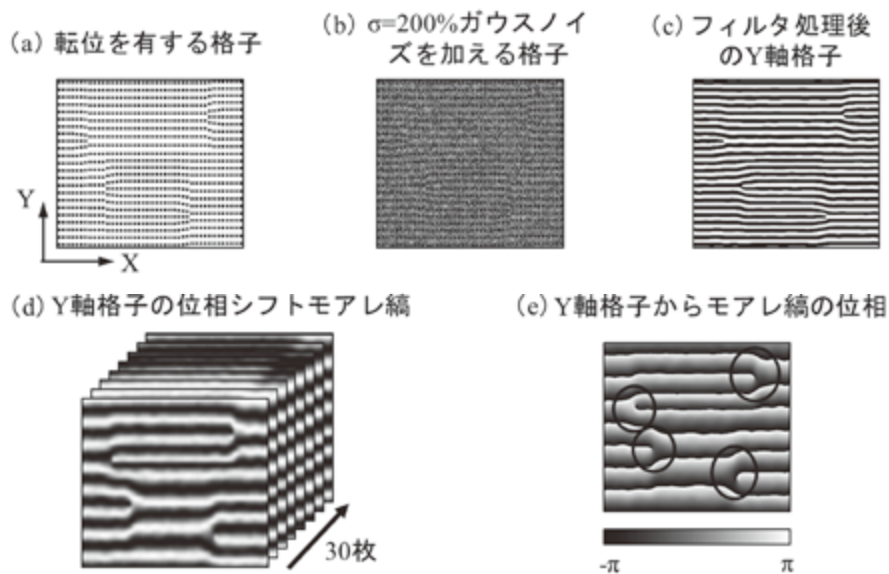


図 2. Y 軸格子に転位を有する 2次元格子から欠陥位置を検知する開発した技術を検証するシミュレーション。

同様に、X 軸格子と Y 軸格子の両方に欠陥がある場合、開発した欠陥検出技術の有効性をシミュレーションから検証した(図3)。図3中の2つの赤円と1つの青円で示すように、モアレ位相から X 方向に 2 つの転位位置と Y 方向に 1 つの転位位置を検知できることが実証された。

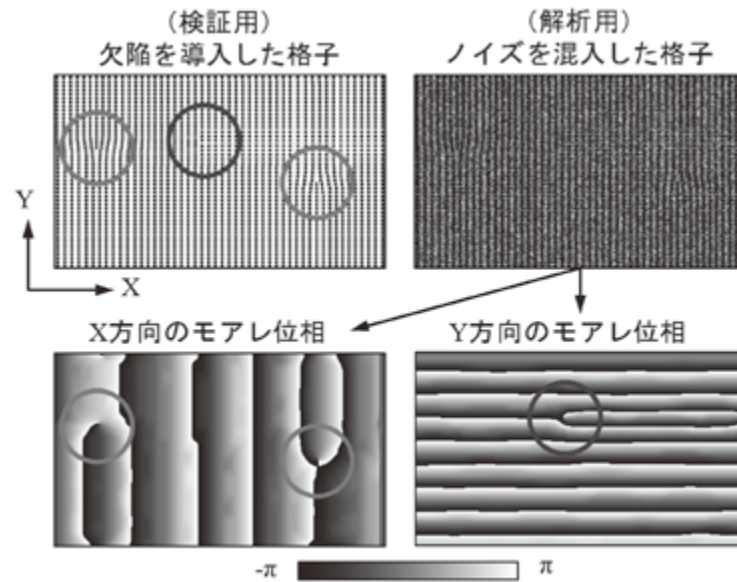


図3. X 軸と Y 軸格子に転位を有する 2 次元格子から欠陥検出のシミュレーション

### 3. 研究結果と考察

この開発した解析技術を半導体デバイスの透過電子顕微鏡写真に適用し、転位検出を試みた。解析に用いた透過電子顕微鏡画像は図4に示す窒化ガリウム半導体の断面である。この断面画像は Y 軸方向上部から保護層、34 nm 厚の GaN、14 nm 厚の AlGaIn、バッファ層から構成され、大きさ  $48 \times 54 \text{ nm}^2$  である。最上部の保護層は非晶質で格子構造が観察できなかつたため解析の対象から除外した。

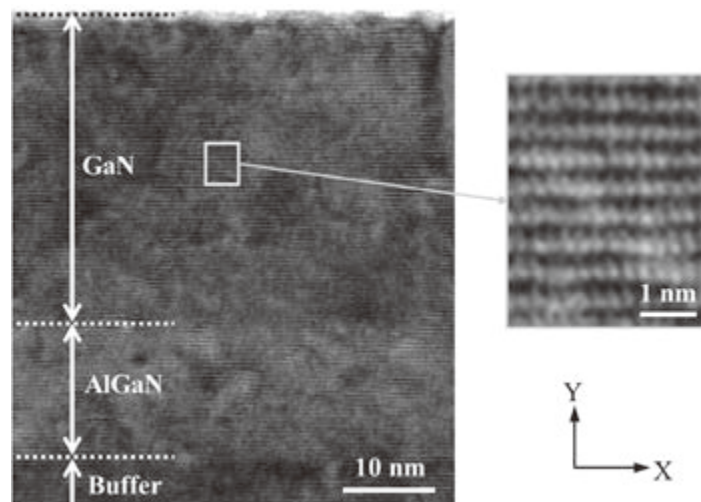


図4. 半導体デバイス中窒化ガリウム構造の透過電子顕微鏡画像

GaN 層の一部を拡大した画像を図 4 右側に示す。X 軸、および Y 軸格子の原子間隔はそれぞれ 0.27 nm、および 0.50 nm であった。解析に用いた画像データのピクセル間隔は 0.09 nm であったことから、X 軸、および Y 軸格子の原子間隔はそれぞれ 3 ピクセル、および 5.6 ピクセルに相当する。

この顕微鏡画像にフーリエ変換フィルタリング、およびサンプリングモアレ法を適用して得られた X、および Y 軸格子のサンプリングモアレ縞の位相図を図 5 に示す。X、および Y 軸格子間隔はそれぞれ 3、および 5.6 ピクセルであったことから、サンプリングモアレ法の適用においては両方向で 4 ピクセル毎の間引き処理をした。図 4 に示した電子顕微鏡観察画像の原子配列は不明瞭であったが、図 5 に示す原子配列を拡大したサンプリングモアレ縞の位相線図は明瞭で、転位に相当するモアレ縞の終点、分岐点が目視で容易に確認できる。

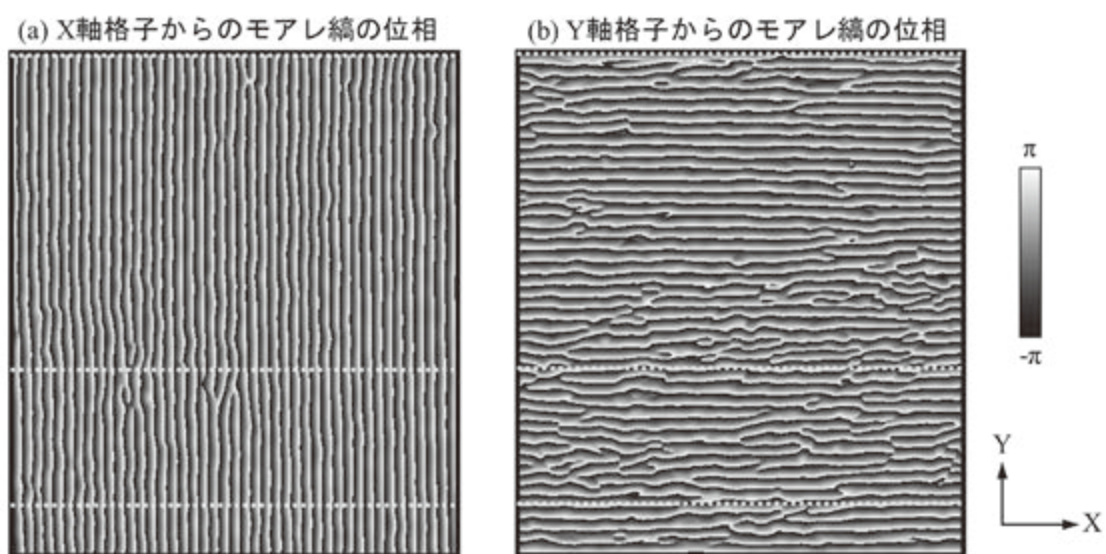


図 5. 窒化ガリウム構造の X、Y 軸格子からのモアレ縞の位相分布

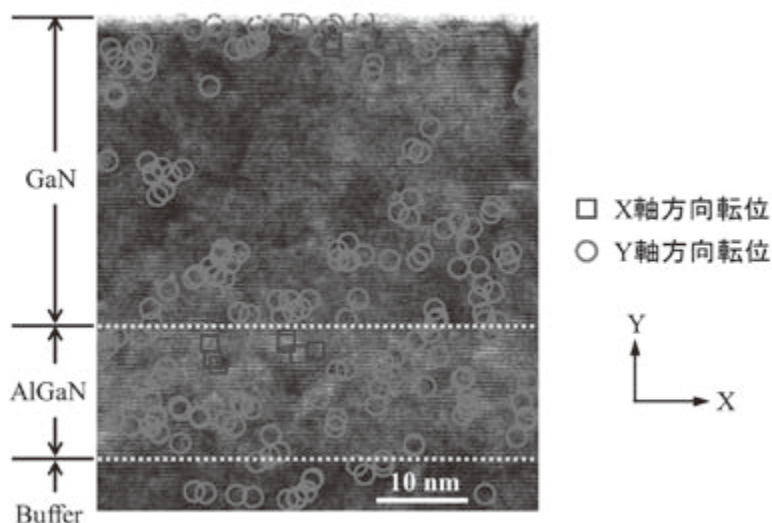


図 6. 窒化ガリウム半導体の透過電子顕微鏡画像から検出した転位分布図

モアレ縞の終点、分岐点箇所を検出する画像処理を図5に施して評価されたX、およびY軸格子の転位箇所を図6に示す。積層方向であるY軸格子において多くの転位が存在したことが分かる。GaN層では中心部における転位は少なく、保護層、またはAlGaInとの界面近傍において多くの転位が存在した。AlGaIn層では層全体で均一に転位が分布して存在し、転位密度は他の層と比較して高かった。また積層方向に垂直なX軸格子の転位はGaNとAlGaIn層界面に集中していたことが本解析より判明した。<sup>1,2</sup> また、このGaN/AlGaIn構造の転位密度も測定した。<sup>1</sup> さらに、開発した技術による、原子配列のひずみ分布も評価することができた。<sup>3</sup>

#### 4. まとめ

今回開発したフーリエ変換フィルタリングされたサンプリングモアレ技術から、広視野で顕微鏡画像内の欠陥分布を可視化に評価することができる。窒化ガリウム半導体の透過電子顕微鏡画像に適用したところ、画像全体で欠陥の一種である転位の分布を自動的に評価することに成功した。半導体デバイスの性能、寿命はプロセス時に導入される転位に大きく依存することから、本研究で開発した技術を用いて製造プロセスが転位分布に及ぼす影響を評価することで、最適な製造プロセスの確立が期待される。

<sup>1</sup> Q. Wang, S. Ri, H. Tsuda, M. Kodera, K. Suguro, and N. Miyashita, *Nanotechnology* 28, 455704 (2017).

<sup>2</sup> 産総研・東芝デバイス&ストレージ共同プレス発表, 透過電子顕微鏡画像から結晶欠陥を容易に検出する技術を開発 (2017.9.21).

<sup>3</sup> M. Kodera, Q. Wang, S. Ri, H. Tsuda, A. Yoshioka, T. Sugiyama, T. Hamamoto, and N. Miyashita, *Jpn. J. Appl. Phys.* 57, 04FC04 (2018).



# 超微小領域における欠陥分布の可視化技術

○王慶華、李志遠、津田浩

非破壊計測研究グループ

## 1. 研究背景

近年、半導体の性能・寿命を保証するため、半導体デバイスの製造時に発生する構造欠陥を精密に制御するプロセス技術の確立が求められている。原子レベルの欠陥は、従来、透過電子顕微鏡(TEM)で撮影された高分解能原子配列画像を目視で観察して評価していたが、高倍率にするほど視野が狭くなるため、広い領域で欠陥を評価するには非常に手間が掛かっていた。

## 2. 研究内容と考察

今回開発した欠陥検出技術はモアレ縞を利用する。結晶の原子配列を規則的な格子と見なし、サンプリングモアレ法からモアレ縞を作成する。モアレ縞は結晶格子を拡大した模様に対応することから、格子に変形をもたらす転位が存在する箇所ではモアレ縞に不連続な変化が現れると考えられる。この考えを検証するために、図1に示すシミュレーションを行った。

開発した技術を次世代パワーデバイスとして期待されている窒化ガリウム(GaN)半導体のTEM像に適用したところ、画像全体で欠陥の一種である転位の位置分布と転位密度の評価に成功した(図2)。画像処理によりモアレ縞の終点、分岐点といった不連続点を自動検出した結果を図2に示す。 $y$ 軸格子に多くの転位があること、 $x$ 軸格子の転位は接合層に多く存在することが分かった。

## 3. 結論および今後の展開

開発した技術を用いて半導体デバイスの製造プロセスが転位分布に及ぼす影響を評価できる。今後汎用のTEM画像解析システムとして画像処理ツールの提供や解析技術の製品化を目指す。

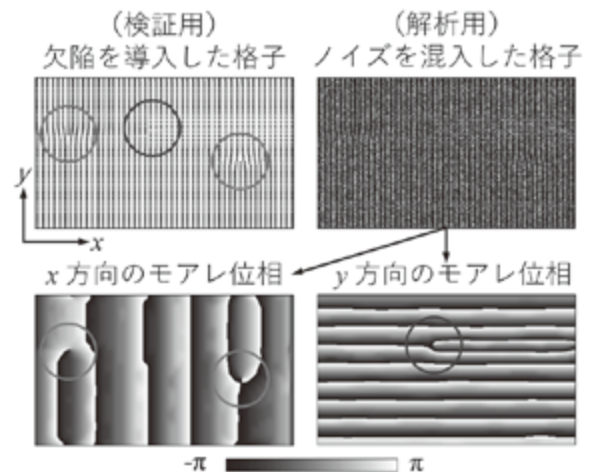


図1. 開発した画像処理技術による欠陥可視化のシミュレーション検証

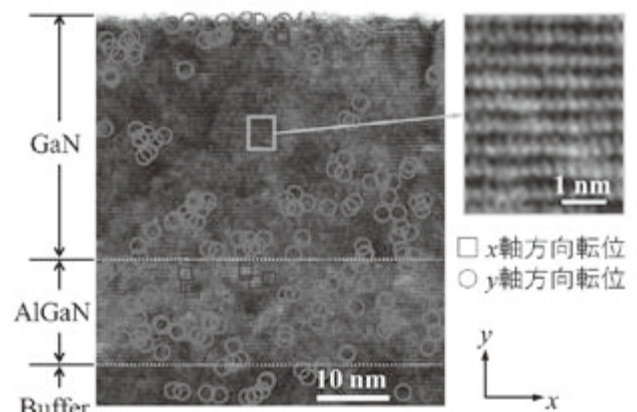


図2. 窒化ガリウム半導体の透過電子顕微鏡写真から検出した転位分布図



# 実用材料加工のためのレーザー加工システム

## ならびに加工評価技術の開発

放射線イメージング計測研究グループ 田中 真人<sup>1</sup>、澁谷 達則、小川 博嗣<sup>1</sup>

佐藤 大輔、田中 宏、三浦 永祐<sup>1</sup>、藤原 健、黒田 隆之助<sup>1</sup>

X線陽電子計測研究グループ オローク ブライアン<sup>1</sup>、大島 永康<sup>1</sup>

東京大学 小林 洋平<sup>1</sup>

先端オペランド計測技術 OIL<sup>1</sup> 盛合 靖章

### 要旨

高品質なレーザーを用いた加工は従来の機械加工では困難な材料加工を実現する技術として注目されている。我々はこのレーザー加工技術の産業利用の推進を目的として、短パルスレーザー等を活用したレーザー加工システムの構築、加工前後ならびに加工中の材料評価技術の開発、ならびに産業ニーズ調査結果等を基にした各種材料のレーザー加工技術・加工条件の最適化を進めており、その現状に関して報告する。

### 1. はじめに

レーザーを使った材料加工技術は Society5.0 社会を支える次世代加工の基盤として、そのデジタル制御の容易さなどから、将来の生産現場における最重要ツールとして期待されている。実際に、減少傾向にある工作機器全体の売上において、加工用レーザーシステムの売上は年々増加しつつある。

我々は医療材料やガラス材料開発メーカーなど様々な業種の関係者にレーザー加工のニーズ等に関するヒアリングを実施した。その結果従来のレーザー加工技術では困難な材料の加工や加工部位以外での材料損傷が少ない非熱的加工などの産業ニーズが高まっていることが明らかになった。しかしながらレーザー加工は導入コストの高さや加工条件の複雑さなどから、利用の閾値が高いことも判明した。

微細加工や非熱的加工において、フェムト秒オーダーの超短パルスレーザーや紫外レーザーは有用に働くと考えられるが、穴あけなどの材料加工に適したレーザーは少なく、またこれらによる実用材料のレーザー加工技術の知見も少ない。

平成 28 年より開始した NEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」プロジェクトでは、上述した産業ニーズに応えるべく、レーザー加工のための短パルス深紫外レーザーやハイパワーレーザーの開発をはじめとして、レーザー加工メカニズムの解明、ならびにレーザー加工プラットフォームやデータベースの構築等を行っている。当研究グループは当該プロジェクトに参画し、主に超短パルスレーザー等を駆使した実用材料の加工技術や加工評価技術の開発とレーザー加工データベースの構築の一部を担当しており、本報告書ではその研究開発現況の概要を述べる。

## 2. レーザー加工システム等の構築とレーザー加工技術開発

まず加工用レーザーシステムとして、Coherent社製のチタンサファイア超短パルスレーザー（パルス幅約 70 フェムト秒）を基に高調波発生技術を活用して、4つの照射波長（800 nm、400 nm、266 nm、200 nm）が利用できるレーザー加工システムを産総研東京大学連携研究サイト（千葉県柏市）に構築した。その写真を図1に示す。このレーザーはパルス繰り返し周波数が 1~10 kHz の範囲で可変であり、かつレーザーパワーは基本波(800 nm)で約 3 mJ、二倍波(400 nm)と三倍波(266 nm)でそれぞれ 1.2 mJ と 0.14 mJ である。

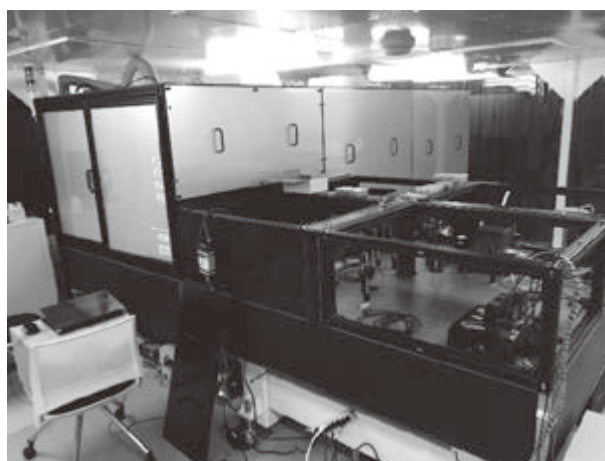


図1. 構築中の短パルスレーザー加工システムの外観

四倍波のパワーは現在測定中である。レーザー加工時はレーザー光を対物レンズを通して縮小化している。またこのレーザーは加工中の材料の状態計測のためのポンププローブ分光システムにも利用している。他にもナノ秒パルスの波長 355 nm と 266 nm の Nd:YAG レーザーを用いた同サイトにて利用可能であり、材料の種類や加工種類に応じて選択して利用している。

これらのレーザー加工システムを用いて、穴あけ・表面改質（親水性・撥水性）などの通常の機械加工では困難な材料へのレーザーによる精密加工（非熱的加工）技術の開発を進めている。材料や加工内容に関しては、様々な業種の企業へのヒアリング結果などから抽出された産業ニーズに即したものを主に選択して、レーザー加工技術開発を行っている。

その一例として石英ガラス基板への超短パルスレーザー照射とエッチング処理によって得られた微細孔開け加工結果のレーザー顕微鏡画像（断面図）を図2左に、チタン表面への超短パルスレーザー照射により得られた微細周期構造の二次電子顕微鏡画像

ならびに撥水性を表す写真を図2右に示す。ガラスへの穴開け加工は高密度な電子回路基板開発の基礎となるものであり、スマートフォンなど様々な精密電子機器への応用がなされている重要な加工技術である。撥水加工は例えば建築材や食品包装

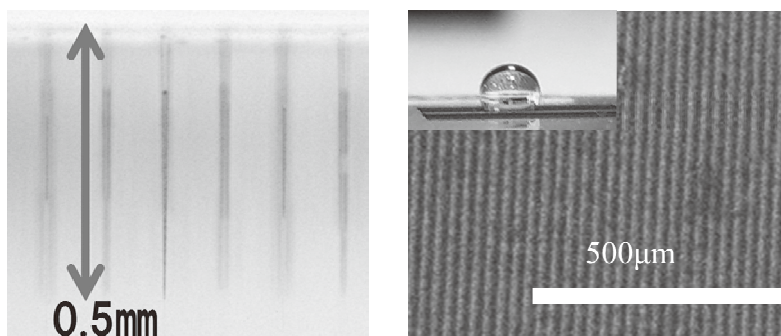


図2. フェムト秒パルスレーザーによるレーザー加工の例。左：穴開け加工したガラス材料の光学顕微鏡図（断面図）、右：チタン表面への微細構造作成による撥水性の付与の例（二次電子顕微鏡画像）。

などの分野に広いニーズがあり、レーザーによる加工はコーティングなどの一般的な方法と異なり剥離等による性質の劣化が少ないという特徴を有している。今後は加工速度の高速化や撥水性だけでなく撥油性の付与などの加工条件探索を進めていく。

### 3. レーザー加工に関する計測手法の開発と分析結果

レーザー加工のメカニズム解明や加工条件の最適化のためには、加工前後ならびに加工中での材料評価が重要である。加工前後の評価手法としては現在主にレーザー顕微鏡、赤外分光、ラマン顕微鏡、二次電子顕微鏡、原子間力顕微鏡、陽電子消滅分光などを用いている。レーザー顕微鏡等による形状計測に加え、赤外・ラマン分光による分子構造変化や陽電子消滅分光による空孔の変化にも着目した分析を材料に応じて進めている。さらに加工中の評価手法として、超高速カメラによる高速撮影技術や試料での反射・透過光のポンププローブ分光システムの開発を進行している。

高速撮影として、ガラス材料へのフェムト秒レーザー照射による亀裂進展の観察に成功している。その結果を図3に示す。ここではレーザーの走査速度が0.2 mm/sec と 1 mm/sec との場合で亀裂進展の差異を観測したところ、遅い速度の方が、亀裂が小さく、きれいなレーザー加工ができていることを加工中に判断することに成功した。

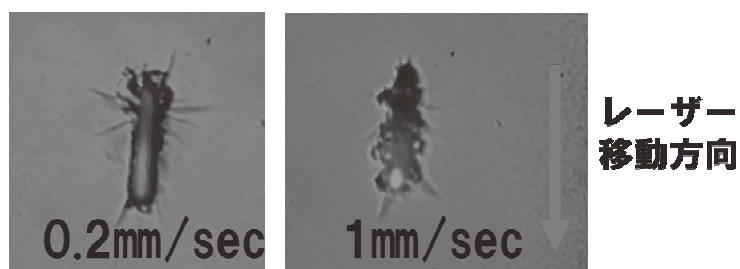


図 3. 超高速カメラ(1000fps)で撮影したフェムト秒パルスレーザーによるガラス材料の亀裂進展画像。左：レーザー移動速度 0.2 mm/sec、右：1 mm/sec。

加工前後の材料評価に加え、材料の光学特性（屈折率、吸収係数など）を詳細に明らかにすることは、材料とレーザーとの相互作用を考えるうえで非常に重要である。また高強度レーザーや短波長レーザーによる光反応を考慮するために、なるべく短波長域の波長領域で測定することが必要である。

そのため可視～真空紫外域において測定が可能なエリプソメトリ分光装置を開発している。その装置外観と試料室内部の写真を図4に示す。この装置は装置内部の乾燥窒素パージが可能であり、またランプ光源（Xe ランプおよび重水素ランプ）、回折格子、直線偏光子、位相子の種類を選択する

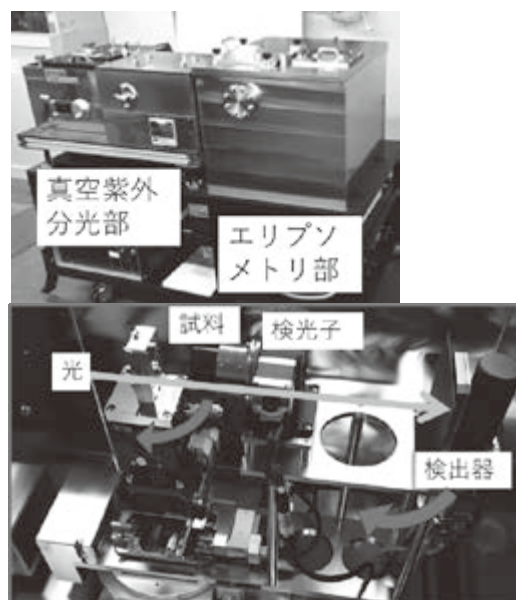


図 4. 開発中の真空紫外領域に対応したエリプソメトリ測定装置の(上)外観と(下)試料室内部。

ことで、波長 600 nm 程度の可視域から 130 nm 程度の真空紫外域でのエリプソメトリ測定（試料反射角 45° 以上）ならびに試料透過吸収測定等が可能である。波長領域は現在近赤外領域への拡張を進めており、またエリプソメトリ測定手法として光弾性変調子を用いたものも利用できるように改良を行っている。

この開発中のエリプソメトリ測定装置の評価を Si(100)試料を用いて行った結果を図 5 に示す。ここで点線が市販の装置（ホリバ・ジョバンイボン製 UVISEL）の結果、丸印が本装置の結果である。このように市販装置で測定可能な波長 200 nm 以上の波長領域において、振幅比ならびに位相差ともに非常に良い一致が得られており、本装置の正当性を確認することができた。現在は本装置等を用いて、様々な材料（ガラス、高分子、金属等）の屈折率、消衰係数、透過吸収係数スペクトルの測定とデータベース構築を進めている。

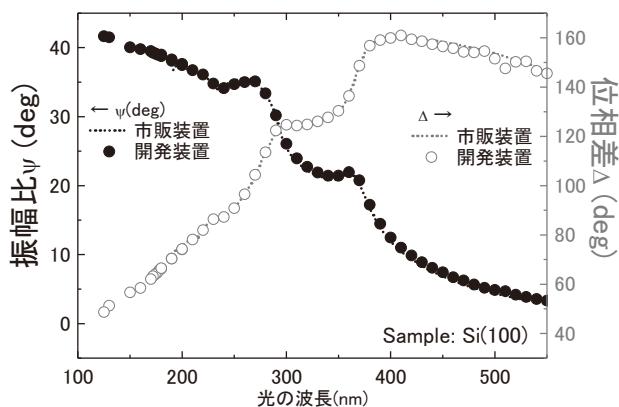


図 5. Si(100) のエリプソメトリ測定結果。黒：振幅比  $\Psi$ 、赤：位相差  $\Delta$ 、●：本装置、点線；市販装置。波長 200 nm 付近までは市販装置での結果と良く一致している。

#### 4. まとめ

実用材料のレーザー加工の高度化を目指して、フェムト秒レーザー等による波長 200~800 nm のレーザー加工システム、加工中ならびに加工前後の分析評価手法、光学特性測定システムの構築と実用材料への応用を進めている。レーザー加工は導入コストの高さなどからその利用に対する閾値が高いことが問題となっている。より多くのユーザーの方々にレーザー加工の利用を検討いただくために、これらシステム等を用いて得られた様々な材料のレーザー加工事例を蓄積している。本システムならびにレーザー加工にご興味のある方は一度ご相談いただければ幸いである。

これらの成果の多くは、NEDO 事業「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」において得られたものである。ここにプロジェクト関係者、ニーズ調査にご協力いただいた皆様方に深謝する。また本プロジェクトにご興味のある方は、「高効率レーザープロセッシング推進コンソーシアム(TACMI)<sup>1</sup>」（設立：東京大学）もご参考にされたい。

<sup>1</sup> <http://www.utripl.u-tokyo.ac.jp/tacmi/>



# 実用材料加工のためのレーザー加工システム ならびに加工評価技術の開発

○田中真人<sup>1,2</sup>, 澁谷達則<sup>1</sup>, 小川博嗣<sup>1,2</sup>, 佐藤大輔<sup>1</sup>, 盛合靖章<sup>2</sup>, 田中宏<sup>1</sup>,  
三浦永祐<sup>1,2</sup>, 藤原健<sup>1</sup>, O'Rourke Brian<sup>1,2</sup>, 大島永康<sup>1,2</sup>, 小林洋平<sup>2,3</sup>, 黒田隆之助<sup>1,2</sup>  
1:放射線イメージング計測研究グループ,  
2:先端オペランド計測技術オープンイノベーションラボラトリー, 3:東京大学

## 1. 開発の背景

レーザー加工は次世代のツールとして、そのデジタル制御のしやすさなどから重要視されています。我々は超短パルスレーザー等を駆使した加工技術と分析評価技術の開発、加工データベースの構築を進めています。

## 2. 開発の内容

ガラス材料(石英、工業ガラス等)、高分子、医療・生体材料(ポリ乳酸等)などの産業ニーズの高い材料を主なターゲットとして、穴あけ・表面改質(親水性・撥水性)等の通常では困難な材料へのレーザーによる精密加工(非熱的加工)技術を開発しています。

超短パルスレーザー(100フェムト秒以下)を駆使して、4つの照射波長(800~200nm)が利用できるレーザー加工システムの構築とガラスへの微細孔形成や、真空紫外エリプソメトリ等の分析装置開発を進めています。

## 3. 連携可能な内容

- ・深紫外～近赤外領域の超短パルスレーザー加工システム(100フェムト秒以下)による非熱的加工技術・微細加工技術(穴あけ、切断、表面改質など)
- ・従来の加工で困難であったニーズへの対応
- ・対象材料:ガラス、高分子、医療・生体材料、その他加工材料なんでもご相談ください。
- ・高効率レーザープロセッシング推進コンソーシアム(TACMI)での加工プラットフォーム  
<http://www.utripl.u-tokyo.ac.jp/tacmi/>

**広帯域フェムト秒レーザー加工システム**

レーザー加工 / オペランド計測

フェムト秒UV加工  
フェムト秒UV加工  
フェムト秒UV加工  
フェムト秒UV加工

ナノ秒UV加工  
ナノ秒UV加工

レーザー加工システム @ 柏サイト

0.5mm ガラス材料への微小孔形成レーザー加工による精密ガラス加工

←Tiへの超撥水加工

500μm

**分析評価技術**

レーザー移動方向

0.2mm/sec 1mm/sec

高速カメラによるガラスの亀裂進展観測と加工条件による非熱的加工の検証

時分割反射測定装置 (開発中)

エリプソメトリ等による各種材料の光学特性の蓄積

振幅比<sub>y</sub> (deg)

φ(deg)

光の波長 (nm)

振幅係数 (cm<sup>-1</sup>)

Wavelength (nm)



## 産業利用を目指した小型電子加速器中性子施設とその利用の研究

X線・陽電子計測研究グループ 木野 幸一<sup>1</sup>、オローク ブライアン<sup>1,3</sup>、満汐 孝治<sup>1</sup>  
鈴木 良一<sup>1</sup>、大島 永康<sup>1,3</sup>、林崎 規託<sup>1,2</sup>、友田 陽<sup>1,4</sup>  
放射線イメージング計測研究グループ 小川 博嗣<sup>1,3</sup>、田中 真人<sup>1,3</sup>、藤原 健<sup>1</sup>  
佐藤 大輔<sup>1</sup>、清 紀弘<sup>1</sup>、豊川 弘之<sup>1,3</sup>、黒田 隆之助<sup>1,3</sup>  
構造材料研究部門 軽量金属設計グループ 渡津 章<sup>1</sup>  
株式会社日産アーク 伊藤 孝憲<sup>1</sup>、今井 英人<sup>1</sup>、松本 隆<sup>1</sup>  
新構造材料技術研究組合<sup>1</sup>、東京工業大学<sup>2</sup>  
先端オペランド計測技術 OIL<sup>3</sup>、物質・材料研究機構<sup>4</sup>

### 要旨

現在我々は輸送機器の構造材料分析を目指して、小型電子加速器中性子施設の設計・建設を行っている。特にパルス中性子透過法によるブラッグエッジイメージングに着目しており、輸送機器の構造材料分を可能にする高い中性子波長分解能と強度が得られるよう、複数の最適化を行った。最適化の下で得られる中性子の特性をモンテカルロシミュレーションにより予測した。これらの研究と並行して、測定対象物の一つと考えている薄板接合試料のパルス中性子透過イメージングを大強度陽子加速器施設にて行った。摩擦攪拌接合を用いたアルミニウム板の試料において、アルミニウム多結晶のブラッグエッジが中性子波長の関数としての透過率スペクトル上に得られ、接合部と母材での結晶配向の違いを画像化することができた。

### 1. はじめに

我々は自動車などの輸送機器において、その軽量化に寄与する構造材料開発に、中性子が有効であると考えている。中性子は電荷が無いため物質透過能力が高く、材料やその製品を非破壊で分析するのに適している<sup>1</sup>。特に、時間的にパルス状に発生する白色中性子ビーム（パルス中性子ビームと呼ばれる）と、中性子に計測試料を透過させて計測する方法（中性子透過法と呼ばれる）を組み合わせる計測手法（パルス中性子透過法）が有用である。鉄鋼に代表される構造材料の場合それは多結晶であり、透過した中性子の中性子波長スペクトルには、中性子の物質との回折現象に起因するブラッグエッジと呼ばれる構造が現れる。ブラッグエッジの分析から材料中の結晶の組織や配向や歪み等の情報を一度に得ることができる<sup>2</sup>。さらに中性子の検出に2次元検出器を用いることで、これら情報を2次元画像として得られる利点がある。これらを合わせた手法は、ブラッグエッジイメージングと呼ばれる。

得られる情報のうち、結晶歪みや結晶相の分析には、高い中性子波長分解能が求められる。また、2次元画像を得るためには、高い中性子の統計が必要となる。このために我々の設計には、これらの条件を満たすように最適化を施している。装置開発と並行して、他

施設のパルス中性子ビームを用いて、構造材料の一例のブラッグエッジイメージング実験を実施した。本報告では、前回の報告で行った中性子施設の最適化やモンテカルロシミュレーションを使っての中性子ビームの特性予測については簡潔に説明し、我々の行ったブラッグエッジ実験に重点を置いて報告する。

## 2. 中性子源の構成と最適化および中性子ビームの特性

中性子施設は主に、電子線形加速器、中性子源、中性子計測用ビームラインで構成されるこれら構成要素に対して、表 1 の最適化を行っている。(a)と(b)は主に高波長分解能に寄与する。ブラッグエッジから得られる情報の中でも、結晶の組織や歪みの分析には高い波長分解能が要求される。本中性子装置では、中性子の速さすなわち波長は、中性子が減速材から検出器まで飛行する時間の計測によって得られる。減速材中では中性子は多数回の散乱によって減速するが、あるエネルギーにまで減速するにも散乱の回数にはばらつきがある。すなわち、減速材から放出される中性子には時間のばらつきがあり、これを抑制することにより中性子の飛行時間すなわち波長の分解能を向上させるのが(a)の最適化である。また波長分解能を向上させるには、中性子の飛行距離を長くして飛行時間を長くする方法もある。本中性子源では飛行距離を約 8 m としている。飛行距離を長くすればするほど波長分解能は向上するが、一方で飛行時間が長くなりパルスの繰り返し数を下げる必要が生じるために、試料に照射する中性子の強度が低下してしまう。このバランスを考慮し(b)の最適化を施した。(c)~(e)は計測時間を短くするのに寄与する。(c)のように高いパワーの電子ビームを供給できる電子加速器を採用する。本装置の電子加速器の電子ビームエネルギー約 35 MeV では、中性子強度は電子ビームパワーに比例する。また、パルス中性子は電子ビームのパルスと同期するが、この周波数を測定対象や測定手法にマッチングさせることが大切である。本中性子装置では、材料分析をブラッグエッジイメージングによって行うことを目標としている。例えば鉄鋼材料では、ブラッグエッジの現れる中性子波長は最大で 0.4 nm 程度である。100 Hz のパルス中性子は 10 ms 毎に発生するが、8 m 中性子を飛行させた場合、10 ms の間で 0 から約 0.5 nm の間の中性子を使うことができる。すなわち、効率良い計測を行うことができる。(e)は中性子を高効率で検出することで、計測時間の短縮を図っている。

表 1. 中性子源の最適化一覧

(a)	非結合型中性子減速材（デカップルド）の採用
(b)	飛行路長の最適化（約 8 m）
(c)	国内の既存の小型中性子源トップクラスである約 10 kW の電子ビームの採用
(d)	パルス中性子繰り返し周波数の最適化（100 Hz）
(e)	高性能中性子検出器の利用（検出効率 20 %@中性子波長 4Å）

中性子ビームの特性は、モンテカルロコード PHITS(Ver. 3.02)<sup>3</sup>を用いたシミュレーション計算によって得られた。減速材から 8m の地点で、中性子波長 0.2~0.5 nm の積分値で最

大  $4.5 \times 10^4 / \text{cm}^2/\text{s}$  のフラックス、中性子波長  $0.2 \sim 0.4 \text{ nm}$  の範囲で波長分解能が  $0.5 \sim 0.7 \%$  であることが分かった。なお減速材の厚さは、PHITS シミュレーション計算によってフラックスと波長分解能の両方のバランスを鑑みて  $30 \text{ mm}$  に最適化されている。

### 3. 接合試料のブラッグエッジイメージング実験と考察

実験は、大強度陽子加速器施設 (J-PARC) の物質・生命科学実験施設のビームライン 22(RADEN)にて行った。実験試料の写真を図 1 に示す。この試料は、厚さ  $1 \text{ mm}$  のアルミニウム板を 2 枚重ねたものを、摩擦攪拌点接合(FSSW)という手法で互いに接合したものである。FSSW は、回転する接合ツールを接合材に押し付けて接合材を融点以下で攪拌することで接合する手法である。接合ツールはピン部とショルダー部から成り、ピン部で接合材を攪拌し、ショルダー部で接合材熱が付与される。本試料でピン部によって空いた穴の直径は約  $4 \text{ mm}$ 、ショルダー部による影響部は直径約  $10 \text{ mm}$  である。アルミニウムの中性子透過率は非常に高い。よって今回は FSSW 試料を 2 つ重ねて中性子を照射した。試料は中性子源から  $24 \text{ m}$  の位置に設置された。試料のすぐ下流には nGEM と呼ばれる中性子 2 次元検出器を設置した。この検出器は  $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$  の有感面積をもち、空間分解能は  $0.8 \text{ mm}$  である。試料位置での熱中性子フラックスは約  $2 \times 10^4 / \text{cm}^2/\text{s}$  であった。中性子照射時間は約 9 時間であった。

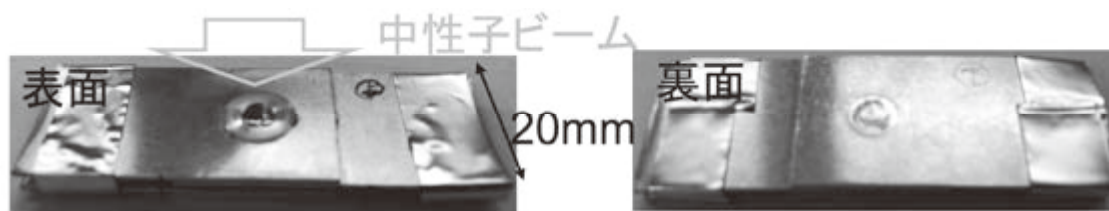


図 1. 実験試料の写真。FSSW 試料を 2 枚重ねてある。中性子は面方向に照射された。

実験結果を図 2 に示す。図 2 右図は、中性子波長全域における透過率の分布である。これに、図 1 の写真を同じ寸法で重ねてある。FSSW の周辺部 (ショルダー部)、FSSW の中心部 (ピン部)、母材部(1,2)、試料の無い部分をそれぞれ、図 2 右図の赤、ピンク、緑、青、黒色で囲った領域とし、これら領域の中性子波長の関数としての透過率スペクトルにしたものが、図 2 左図である。

FSSW 周辺部、母材部のデータに、ブラッグエッジが認められる。図中の黒色曲線は理論計算によるスペクトルである。これらの比較から、111, 200, 220 反射のブラッグエッジであることがわかる。特に 111 反射に関しては、FSSW 周辺部では明瞭に見られるものの、母材部では見られない。母材部では結晶に異方性があるが、FSSW により熱影響を受けた部分では等方性が現れた可能性がある。FSSW 中心部では、攪拌によりアルミニウムが非常に薄くなっており、明確なブラッグエッジは見られない。また、これと試料の無い部分の透過率は共に 1 を上回っている。この原因としては、同時に計測した他の試料によって

散乱された中性子がバックグラウンドとして混入したためと考えられる。

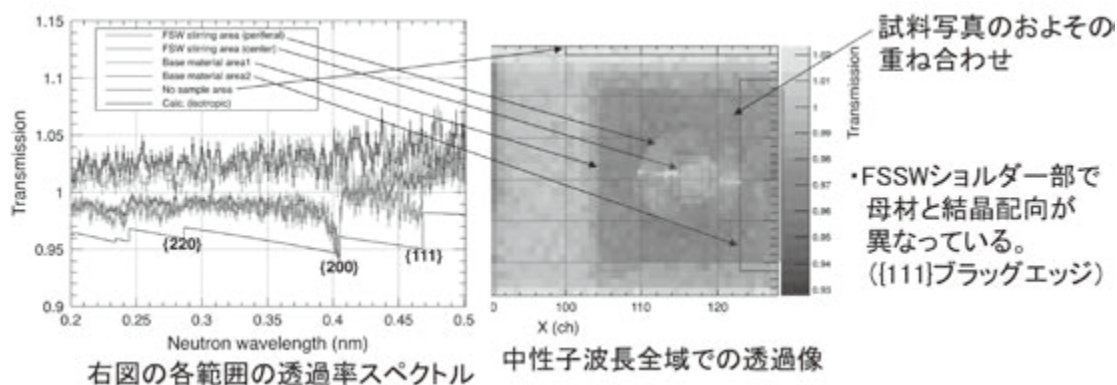


図2. 右：全中性子波長での透過率イメージ。左：右図で選択した領域での透過率スペクトル。

次に、図2で見出された111ブラッグエッジの違いのイメージングを行った。この手法と結果を表したのが図3である。図3左図のように111ブラッグエッジ（波長0.468 nm）より長波長側0.06 nmの透過率の合計の1/3倍を、111ブラッグエッジより短波長側0.02 nmの透過率の合計で割った値を画像化した。この結果が、図3右図である。同図には、結晶異方性の変化が円環状の模様となって現れている。同じスケールで試料写真が載せてあるが、この円環とショルダー部が一致していることがわかる。

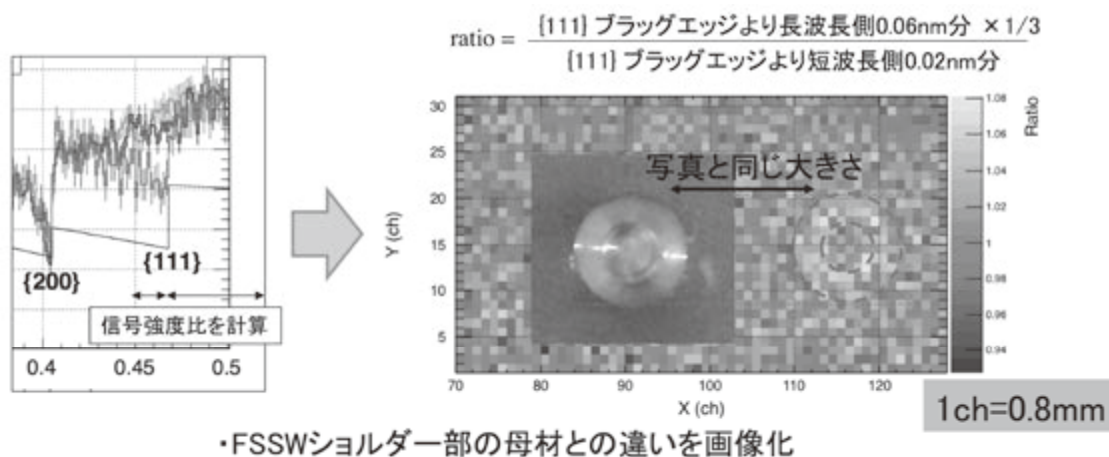


図3. 左：透過率スペクトルの111ブラッグエッジ付近。右：結晶異方性の変化を画像化した結果。

#### 4. まとめ

小型電子加速器中性子施設的设计・建設とともに、輸送機器の構造材料分析のブラッグエッジイメージング実験を行った。実験の結果、摩擦攪拌点接合に伴う材料の結晶異方性

の変化を画像化することができた。今後、本中性子施設を完成させるとともに、分析手法の開発を並行して進める。

#### 謝辞

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託事業革新的新構造材料等研究開発の結果により得られたものです。実験をサポート頂きました J-PARC/MLF/RADEN スタッフに感謝いたします。

<sup>1</sup> 産総研ニュース「構造材料開発の高度化を加速する小型加速器中性子施設の構築に着手」（2017年8月1日）[http://www.aist.go.jp/aist\\_j/news/au20170801.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/news/au20170801.html)

<sup>2</sup> R. Woracek, J. Santisteban, A. Fedrigo, M. Strobl, Nucl. Instr. Meth. A 878, 141 (2018).

<sup>3</sup> T. Sato *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 50:9, 913-923 (2013).



# 産業利用を目指した小型電子加速器中性子施設とその利用の研究

○木野 幸一<sup>1,3</sup>, オローク ブライアン<sup>1,3,5</sup>, 満汐 孝治<sup>1,3</sup>, 鈴木 良一<sup>1,3</sup>, 大島 永康<sup>1,3,5</sup>, 林崎 規託<sup>1,3,4</sup>, 小川 博嗣<sup>2,3,5</sup>, 田中 真人<sup>2,3,5</sup>, 藤原 健<sup>2,3</sup>, 佐藤 大輔<sup>2,3</sup>, 清 紀弘<sup>2,3</sup>, 豊川 弘之<sup>2,3,5</sup>, 黒田 隆之助<sup>2,3,5</sup>, 渡津 章<sup>3,6</sup>, 伊藤 孝憲<sup>3,7</sup>, 今井 英人<sup>3,7</sup>, 松本 隆<sup>3,7</sup>

X線・陽電子計測研究グループ<sup>1</sup>, 放射線イメージング計測研究グループ<sup>2</sup>, 新構造材料技術研究組合<sup>3</sup>, 東京工業大学<sup>4</sup>, 先端オペランド計測技術OIL<sup>5</sup>, 構造材料研究部門 軽量金属設計グループ<sup>6</sup>, 株式会社日産アーク<sup>7</sup>

## 1. 研究・開発の背景

産業利用を主目的とした小型加速器中性子施設の開発と建設を進めている。輸送機器の主要構造材料に用いられる金属等の軽量化や、革新的な新構造材料開発において、試料単体あるいは部材等に組みつけた状態での非破壊分析に、パルス中性子ビームによる波長分解型イメージングが有用であると考えている。

## 2. 研究・開発の内容

中性子施設は、電子加速器、中性子発生部、中性子計測用ビームラインで構成されるが、構造材料分析に求められる高い中性子波長分解能と産業利用に有効な計測時間を両立するため、複数の最適化を施してある。また、モンテカルロシミュレーションにより、これら最適化の結果得られるパルス中性子ビームの特性や放射線遮蔽の予測を行い詳細設計と建設を進めている。また、本中性子施設での測定対象物の一つと考えている薄板接合試料のパルス中性子透過イメージング実験をJ-PARC・MLF・BL22を用いて行った。

## 3. 考察・議論

図1に実験結果を示す。摩擦攪拌点接合(FSSW)を用いたアルミニウム板の試料において、アルミニウム多結晶のブラッグエッジが中性子波長の関数としての透過率スペクトル上に得られた。(111)ブラッグエッジにおいて、接合部と母材での結晶配向の違いが得られた。この違いを図1のように画像化することに成功した。

## 4. 結論および今後の展開

小型加速器中性子施設の開発・建設を進めるとともに、摩擦攪拌点接合試料の結晶配向を画像化できた。今後とも施設と計測手法の両面の研究・開発を進める。

**謝辞** この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の委託事業 革新的新構造材料等研究開発の結果により得られたものです。

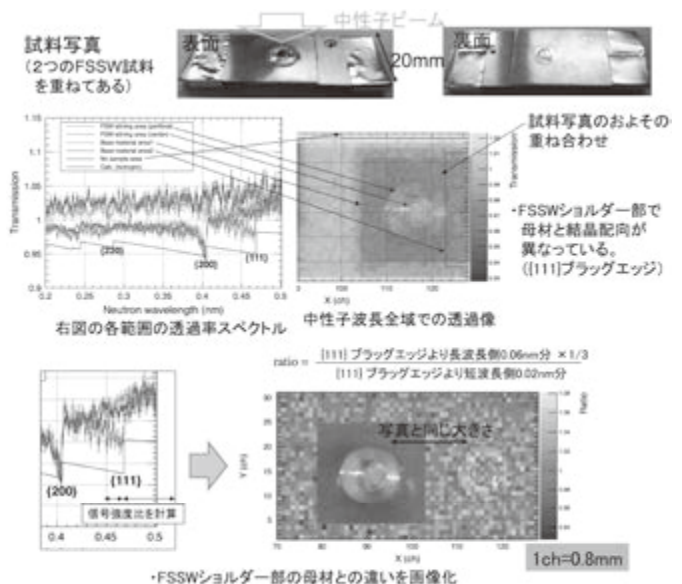


図1. 摩擦攪拌接合試料の測定結果

## ナノ空隙評価のための高強度低速陽電子ビーム利用施設

X線・陽電子計測研究グループ 満汐 孝治、オローク ブライアン、小林 慶規、  
鈴木 良一、大島 永康

### 要旨

陽電子寿命測定法は、物質中での陽電子ないしポジトロニウムの寿命を測定することで、内部に存在するサブナノからナノメートルスケールのナノ空隙の構造を高感度に評価できる手法である。我々のグループでは、電子線形加速器を利用した低速陽電子ビームの発生・制御技術や、陽電子ビームと陽電子寿命測定法を組み合わせたナノ空隙評価技術の開発に取り組んでいる。本報告では、我々が管理する低速陽電子ビーム利用施設の現状と開発したナノ空隙評価装置の詳細について述べる。

### 1. はじめに

材料中には、材料を構成する原子が抜けて形成された微小な空隙が存在する。こうした空隙の微視的構造は、巨視的な性質と密接に関係しており、材料の特性に大きな影響を及ぼす。例えば、構造材料に代表される鉄鋼材の製造過程や破壊・脆化過程では、原子が1個抜けた空孔欠陥やその集合体(空孔クラスター)が生成したり消滅したりするため、優れた材料開発のメカニズム解明因子と成り得る。また、高分子材料の絶縁特性や分子透過特性、熱膨張特性などには、分子鎖間の自由体積空孔が密接に関係している。このため材料開発の分野においては、材料の組成や構造設計だけでなく、派生するナノ空隙の構造評価も重要となる。ナノメートルスケールよりも大きな空隙に関しては、顕微法やX線散乱、比表面積測定法などによる構造評価が可能であるが、材料中に埋もれたサブナノからナノメートルスケールのナノ空隙の構造評価は特に難しく、新たな評価手法の開発が望まれてきた。

陽電子寿命測定法は、電子の反粒子である陽電子を材料中に入射し、陽電子ないし内部で形成されたポジトロニウム(電子と陽電子の束縛状態)の寿命を測定することで、材料中に含まれるナノ空隙の構造を評価する。陽電子やポジトロニウムが空隙に捕捉されると消滅相手である電子との波動関数の重なりが減じるため、寿命が長くなる。すなわち、空隙サイズが広がると寿命が長くなる傾向となるため、この相関から空隙構造を評価できる。この手法は、低フラックスの陽電子線を材料へ入射するため非破壊分析であり、またサブナノからナノメートルスケールの空隙に敏感である<sup>1</sup>。

産業技術総合研究所(産総研) 低速陽電子ビーム利用施設では、陽電子を用いたナノ空隙評価法を先端材料の分析・評価に資することを目的として、電子線形加速器ベースの陽電子ビームとそれを利用したナノ空隙評価装置の開発に取り組んでいる。加速器のパワーを活かした高強度陽電子ビームの発生が可能であり、これを利用して材料の局所分析や高速測定などの多彩な計測に対応できる。

## 2. 低速陽電子ビーム利用施設

当施設では、専用の電子線形加速器と陽電子ビーム発生源、陽電子寿命測定装置群を有している。2017年度では、高速電子ビームを90度偏向させて陽電子発生部に供給する装置配置となっていたが、偏向部において約90%の輸送損失が認められていた。このため、当該年度末に、陽電子発生部を電子ビームラインに対して同一直線上に配置する改造を施した(図1左)。この結果、電子ビームを損失なく陽電子発生部に供給することが可能となり、陽電子ビームの安定供給と高強度化が達成された。

電子線形加速器で40 MeVにまで加速した高速電子パルス(パルス幅2  $\mu$ s)を電子-陽電子コンバーターであるTa円板( $\phi$ 20 mm $\times$ 5 mm)に照射し、コンバーター中で発生した制動放射X線と追隨する電子-陽電子対生成過程を経て、連続的なエネルギーをもつ白色陽電子が作り出される。なお、ビームの繰り返し周波数は10 Hzから50 Hzの間で設定しており、コンバーター位置での電子ビーム電流は周波数にも依るが $\mu$ Aオーダーである。コンバーターの背面には井桁状に組んだW箔(50  $\mu$ m厚、ピッチ3 mm)が配置され、発生した白色陽電子がその箔中で減速し、数eVの単色陽電子(低速陽電子ビーム)となって箔の表面から放出される。得られる陽電子ビームは電子パルスの時間構造を反映してパルス状であり、このままでは陽電子寿命測定で用いる高速シンチレーション検出器の信号が飽和して、測定に用いることができない。このため、陽電子パルス进行ペンニングトラップ(4 m長)に一度捕捉して、ゆっくりと引き出すことで準直流ビームを作り出している。

当施設には、(1)陽電子寿命測定装置と(2)陽電子プローブマイクロアナライザーが配備されている(図1右)。いずれも鉛直方向から陽電子ビームを試料へ入射できる構造となっており、固体試料(バルク、薄膜)だけでなく、液体や粉末体などのナノ空隙評価にも利用できる。これらの装置は、文部科学省「ナノテクノロジープラットフォーム事業」において、共用設備として公開しており、共同利用に供している<sup>2</sup>。

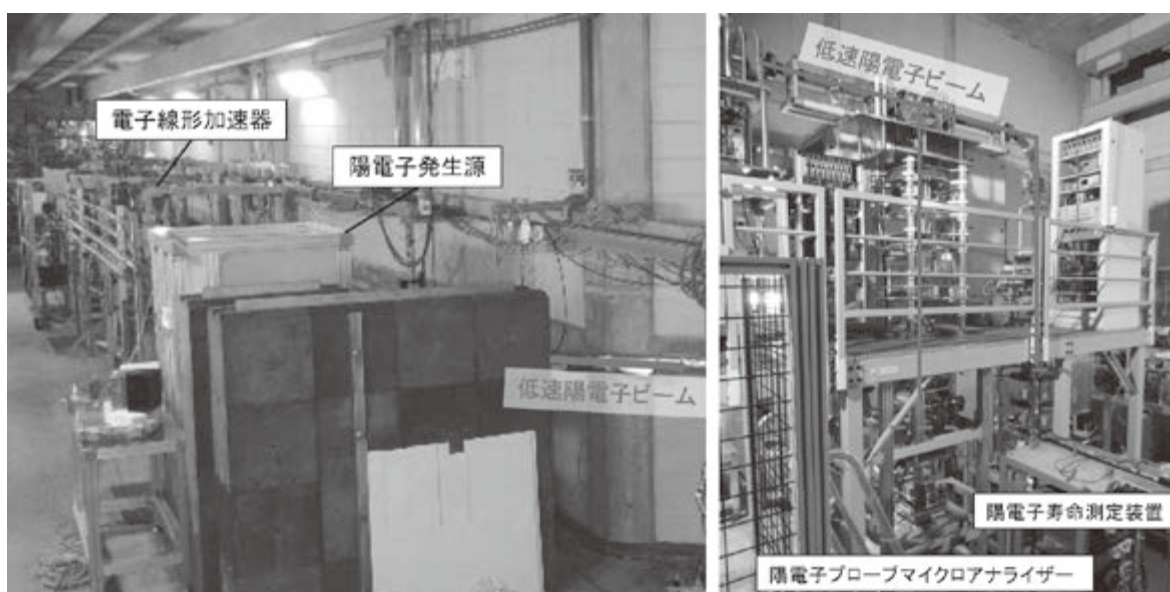


図1. 産総研 低速陽電子利用施設：陽電子発生部(左)と陽電子ビームライン(右)



### 3. 陽電子寿命測定装置

エネルギー可変の陽電子ビームを試料に入射し、試料の深さ方向(平均侵入深さ)を変えて、空隙情報を取得するオーソドックスなビーム式陽電子寿命測定装置である。試料への入射エネルギーは、試料のバイアス電圧(1 kV – 30 kV)を変化させることで可変である。試料位置でのビーム径は 10 mm であり、試料はそれよりも大きくする必要がある。計測率に関しては、前述のとおり、陽電子発生部を配置換えしたことで、陽電子ビーム強度が増強され、測定効率が大幅に向上した。図 2 は、陽電子発生部の移設前後での陽電子寿命スペクトルを測定時間で規格化したものであり、移設によって測定効率が 10 倍程度増加していることが分かる。測定時間は 1 試料あたり 10 分-20 分である。付属の試料ホルダーには一度に 5 試料を搭載可能であり、加えてロードロック機構により容易に試料交換ができるため、大量の試料の測定に対応できる。

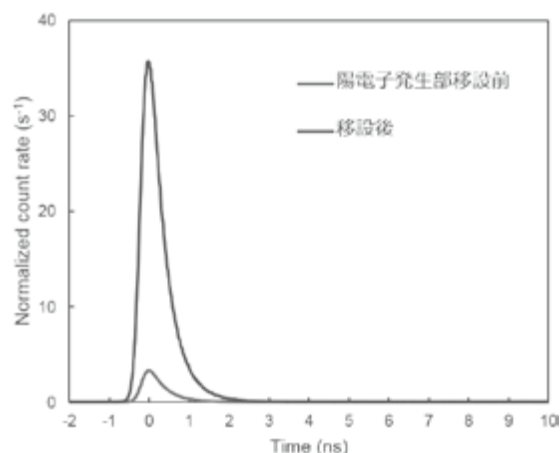


図 2. 陽電子寿命測定における計数率比較。  
試料：カプトン、入射エネルギー：1 keV。

### 4. 陽電子プローブマイクロアナライザー

陽電子ビームを電磁界レンズによって数 10  $\mu\text{m}$  にまで集束して試料に入射し、陽電子寿命を測定する装置である。3.の陽電子寿命測定装置では測定が困難な微小サイズ試料の測定や、試料をコンピューターで平面走査することで、深さと平面方向を空間分解した 3 次元局所陽電子寿命イメージングに対応できる<sup>3</sup>。この技術は、高強度鋼の水素脆化機構解明<sup>4</sup>や延伸ポリエチレン中の自由体積評価<sup>5</sup>などに応用されている。また、集束陽電子ビームを微小な SiN 製真空窓(30 nm 厚)を通して大気圧に引き出し、湿潤調整下で陽電子寿命を測定する、環境制御型陽電子マイクロプローブアナライザーも開発されている<sup>6</sup>。

### 5. まとめ

産総研 低速陽電子ビーム利用施設では、電子線形加速器ベースの高強度陽電子ビームを基幹として、ナノ空隙評価のための分析装置開発に取り組んできた。高速測定対応の陽電子寿命測定装置と局所分析用の陽電子プローブマイクロアナライザーが開発され、共同利用に供している。今後、これらの装置を用いた先端材料の計測支援を引き続き推進するとともに、陽電子プローブマイクロアナライザーの空間分解能向上化や他の量子ビーム照射装置を組み合わせた複合型分析システムの開発に取り組んでいきたい。

<sup>1</sup> 産総研 Today Vol. 14-9 (2014).

<sup>2</sup> <http://unit.aist.go.jp/rima/nanotech>

<sup>3</sup> N. Oshima *et al.*, Appl. Phys. Lett. 94, 194104 (2009).

<sup>4</sup> T. Doshida *et al.*, ISIJ International 52, 198 (2012).

<sup>5</sup> T. Oka *et al.*, Appl. Phys. Lett. 101, 203108 (2012).

<sup>6</sup> N. Oshima *et al.*, Appl. Phys. Exp. 4, 066701 (2011).



# ナノ空隙評価のための 高強度低速陽電子ビーム利用施設

○満汐 孝治、オローク ブライアン、小林 慶規、鈴木 良一、大島 永康  
X線・陽電子計測研究グループ

## 1. 研究の背景

構造材料や機能性材料等の先端材料開発において、材料中に含まれるナノ空隙の構造評価技術が求められている。本施設では、電子加速器ベースの高強度低速陽電子ビーム発生技術と、それを利用したナノ空隙評価のための分析技術の開発を進んでいる(図1)。

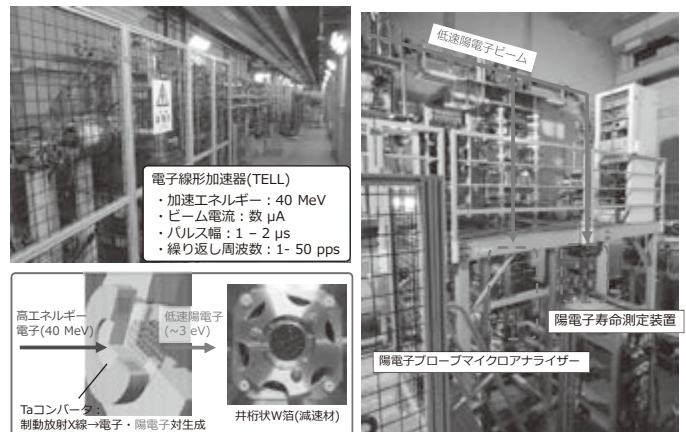


図1. 低速陽電子ビーム利用施設

## 2. 開発の内容

### ▶ 垂直型陽電子寿命測定装置

鉛直方向からの陽電子入射によって、薄膜やバルク試料だけでなく、粉末、液体試料の空隙評価にも対応可能(図2)。

### ▶ 陽電子プローブマイクロアナライザー

マイクロメーターサイズに集束した陽電子ビームを用いた、陽電子寿命の3次元マッピング測定(図3)。

▶ 環境制御型陽電子プローブマイクロアナライザー  
湿度等の環境制御下で陽電子寿命測定を行う、陽電子寿命測定装置の開発も進んでいる。

「ナノテクノロジープラットフォーム事業」において、共用設備として公開

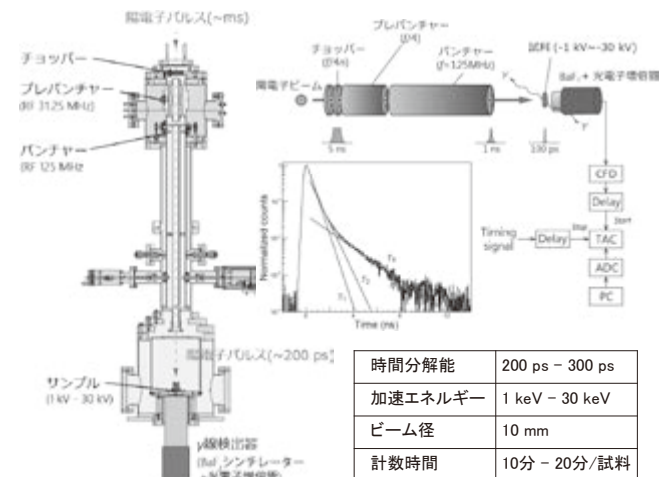


図2. 陽電子寿命測定装置

## 3. ナノ空隙評価の応用事例

- ▶ 金属材料：構造材料の塑性変形、疲労破壊、水素吸蔵合金、ステンレス鋼の水素脆化
- ▶ 半導体デバイス：イオン注入欠陥、Low-k膜、界面欠陥
- ▶ 高分子材料の自由体積：RO膜、絶縁膜、ガスバリア膜

## 4. 結論および今後の展開

電子加速器ベースの高強度陽電子ビーム発生装置と、それを利用した先端空隙評価技術の開発を進めてきた。今後、陽電子ビームの高強度化とさらなる微細集束化による、陽電子寿命マッピングの高分解能化や、マルチ環境で他の量子ビームと複合させたその場分析システムの開発を進める。

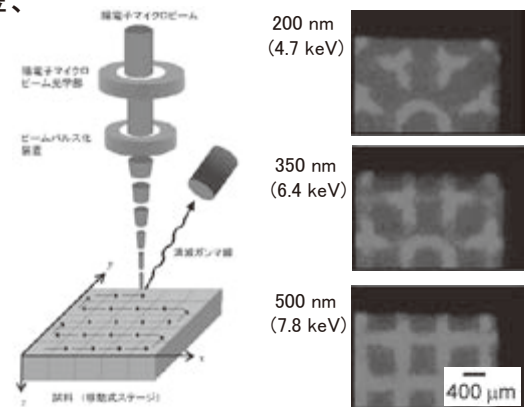


図3. 陽電子プローブマイクロアナライザー

# 高強度レーザーを用いたガンマ線渦の発生

放射線イメージング計測研究グループ 平 義隆

## 要旨

産業技術総合研究所の放射線イメージング計測研究グループでは、約 30 年前からレーザーコンプトン散乱を用いたガンマ線源の開発とその応用研究を推進してきた。筆者らは最近、高強度レーザーを用いたレーザーコンプトン散乱によって軌道角運動量を運ぶガンマ線渦が発生することを理論的に示した。従来よりも角運動量の大きいガンマ線渦は、原子や原子核とこれまでにない相互作用を引き起こすと考えられ新しい分析方法の開発が期待される。

## 1. はじめに

近年、光渦と呼ばれる軌道角運動量(OAM: Orbital angular momentum)を運ぶ量子ビーム源の開発が活発に行われている。図 1 に平面波と OAM を運ぶ光の概要を示す。平面波の場合、波面は分離し、伝播軸に垂直な平面内で位相は一樣である。また、その空間分布はガウシアンビームであれば単一ピークの強度分布になる。それに対して、光渦と呼ばれる OAM を運ぶ光は、前後の波面が繋がって螺旋波面を形成し、横方向平面内で位相が変化する。中心軸は位相が定義できない特異点であるため、その空間分布は特徴的な円環形状になる。

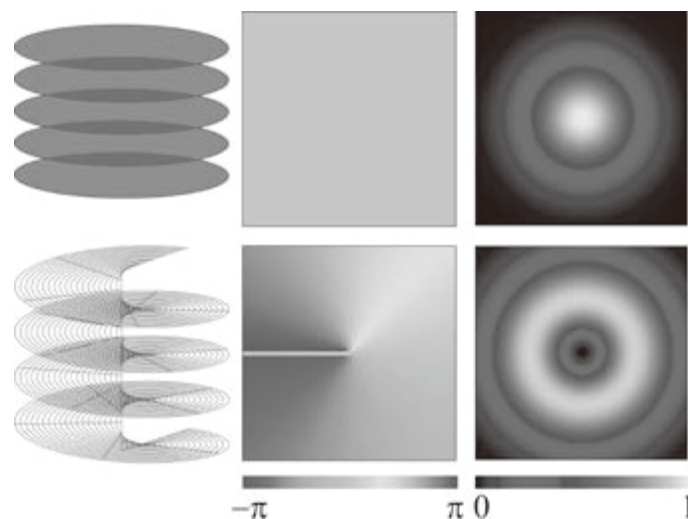


図 1. 通常の光 (上段) と OAM を運ぶ光 (下段) の概要。  
左から波面、位相、強度分布を表す。

1992 年に近軸波動方程式の円筒座標系の解である Laguerre Gaussian モードが OAM を運ぶことを発見<sup>1</sup>されたことをきっかけとして、現在では光渦の発生や測定技術のみならず応用研究も活発に行われている。OAM は光の偏光に起因するスピン角運動量(SAM: Spin angular momentum)とは異なる量子数であり、円偏光した光の SAM が  $\pm 1$  の 2 状態しか取

り得ないのに対して OAM の取り得る値に制限は無い。全角運動量は両運動量の和で表記されるので円偏光した光よりも角運動量の大きい光を発生することができ、その性質を利用した原子の励起に関する実験も行われている。また、光渦はその量子状態の多さを利用した情報通信技術の開発や、イメージング、光ピンセット、ナノ加工、量子もつれ、不確定原理、天体物理など様々な研究への応用が行われている。光渦に関するレビュー論文が何報か出版されている<sup>2-5</sup>。

## 2. レーザーコンプトン散乱を用いたガンマ線渦の発生

産総研の放射線イメージング計測研究グループでは、約 30 年前からレーザーコンプトン散乱によるガンマ線源を開発し、大型機器などの非破壊検査や同位体分析など産業利用に資する研究開発を行ってきた。ガンマ線渦は原子や原子核とこれまでにない相互作用を引き起こすことが期待でき、新しい分析方法が可能になる。

レーザーコンプトン散乱では、電子とレーザーの散乱によってガンマ線が発生する。ピークパワーがテラワット級の高強度レーザーを使うと、通常よりもエネルギーの高いガンマ線が発生する。発表者らは、高強度円偏光レーザーを使ったときに発生する高エネルギーガンマ線が螺旋波面を形成し、OAM を運ぶことを理論計算によって初めて見出した<sup>6,7</sup>(図 2)。

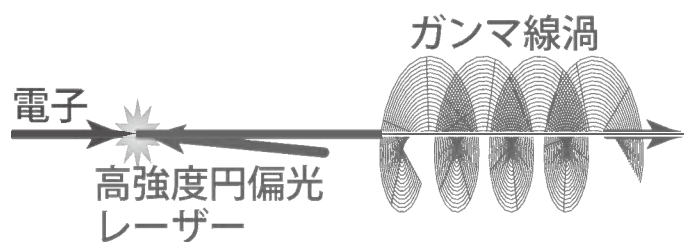


図 2. 高強度円偏光レーザーによるガンマ線渦発生の様式図

ガンマ線渦のエネルギーの計算結果を図 3 に示す。エネルギー 1 GeV の高エネルギー電子ビームと波長 1  $\mu\text{m}$  の高強度レーザーを使用した場合の結果である。図中の  $a_0$  はレーザーの強度を表すパラメータであり、 $a_0 = 1$  は  $1.4 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  のパワー密度に相当する。図より、 $a_0 = 1$  のとき 26 MeV のガンマ線渦を発生できることが分かる。このガンマ線は  $1\hbar$  の OAM を運ぶ。

ガンマ線渦の空間分布は、図 1 下段右側に示すような円環形状になり、光渦の特徴と一致する。高強度レーザーを用いたレーザーコンプトン散乱によって発生する 13 keV X 線の空間分布が円環形状になることはアメリカの Brookhaven National Laboratory において確かめられており、その空間分布の大きさは理論計算の結果と一致する。

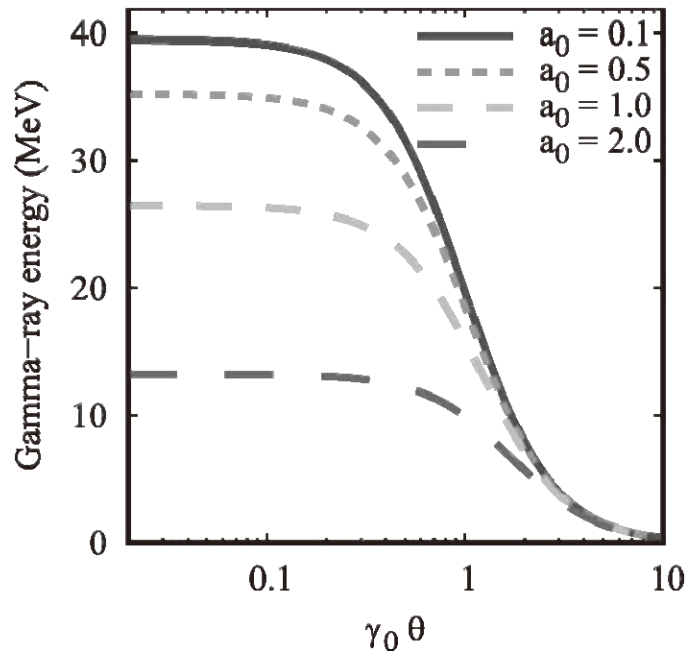


図 3. ガンマ線渦のエネルギー。電子エネルギー 1 GeV、波長 1  $\mu\text{m}$ 。

### 3. X線およびガンマ線渦の螺旋波面測定

現在、レーザーコンプトン散乱によって発生する X 線およびガンマ線の螺旋波面検出に向けた実験準備を進めている。アメリカ Brookhaven National Laboratory だけでなく、量研機構関西研のマイクロトロンとペタワットレーザー J-KAREN-P や分子研の UVSOR 電子蓄積リングと Ti:Sa レーザーを用いて高強度レーザーによるレーザーコンプトン散乱実験が可能である。3 施設とも電子ビームのエネルギーが異なるため、10 keV~10 MeV のエネルギー領域において光渦を発生できる。

可視光領域において光渦の螺旋波面を測定することは様々な方法で可能であるが、ガンマ線渦の螺旋波面を測定する確実な方法は存在しない。しかし、10 ~ 100 keV 程度の低エネルギー X 線渦であれば、干渉法や回折法によって螺旋波面を測定することが確実に可能である。第一段階として、高強度レーザーを用いたレーザーコンプトン散乱によって 10 ~ 100 keV の X 線渦を発生し、干渉法または回折法によって X 線の波面が螺旋になっていることを世界に先駆けて実証する。その後、コンプトン散乱の断面積測定などの方法を用いて、MeV 領域のガンマ線でも波面が螺旋になっていることを実証する。

### 4. まとめ

高強度レーザーを用いたレーザーコンプトン散乱によって新しい量子ビーム源である軌道角運動量を運ぶガンマ線渦の発生が可能であることを述べた。従来よりもエネルギー

の高いガンマ線が螺旋波面を形成し、その空間分布は円環形状になる。従来の円偏光ガンマ線の角運動量は $\pm 1$ の2状態しか取り得なかったが、軌道角運動量加わることによってそれよりも大きい角運動量をもつガンマ線の発生が可能になる。この効果によってガンマ線渦は原子や原子核を従来とは異なる励起状態に遷移することが考えられ、これまでにない新しい分析技術の開発に資することが期待される。

<sup>1</sup> L. Allen et al., Phys. Rev. A 45, 8185 (1992).

<sup>2</sup> L. Allen et al., Prog. Opt. 39, 291 (1999).

<sup>3</sup> A. M. Yao et al., Adv. Opt. Phot. 3, 161 (2011).

<sup>4</sup> B. J. McMorran et al., Phil. Trans. R. Soc. A 375, 20150434 (2017).

<sup>5</sup> B. A. Knyazev and V. G. Serbo, Phys. Usp. 61, 449 (2018).

<sup>6</sup> Y. Taira et al., Scientific Reports, 7, 5018 (2017).

<sup>7</sup> Y. Taira et al., The Astrophysical Journal, 860, 45 (2018).



# 高強度レーザーを用いたガンマ線渦の発生

平 義隆 放射線イメージング計測研究グループ

## 1. 研究背景

放射線イメージング計測研究グループでは、レーザーコンプトン散乱(LCS)によるガンマ線源を開発し、大型機器の非破壊検査や同位体分析など産業利用に資する研究開発を行ってきた。

近年、光渦と呼ばれる軌道角運動量(OAM)を運ぶ量子ビーム源の開発がラジオ波、可視光、X線、電子線、中性子線を用いて活発に行われている。

ガンマ線渦は原子や原子核とこれまでにない相互作用を誘起することが期待でき、新しい分析方法が可能になる。

## 2. 研究内容

LCSは、高エネルギー電子とレーザーの散乱によってガンマ線が発生する過程を指す。発表者らは、TW級の高強度円偏光レーザーを使ったときに発生する2次以上のガンマ線がOAMを運ぶことを理論計算によって初めて見出した(図1)[1,2]。高次ガンマ線は通常の1次ガンマ線に比べてエネルギーが高くなる。また、その性質は図2に示すように光渦の特徴と一致し、らせん波面をもつ円環の空間分布になる。

## 3. 今後の展開

今後は、高強度円偏光レーザーを用いたガンマ線渦の発生技術の確立および回折法や干渉法、コンプトン散乱法を用いたガンマ線渦のらせん波面及びOAMの検出技術開発を行う。

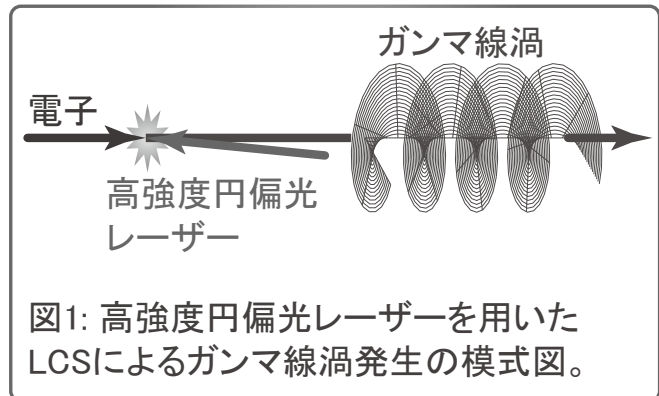


図1: 高強度円偏光レーザーを用いたLCSによるガンマ線渦発生の様式図。

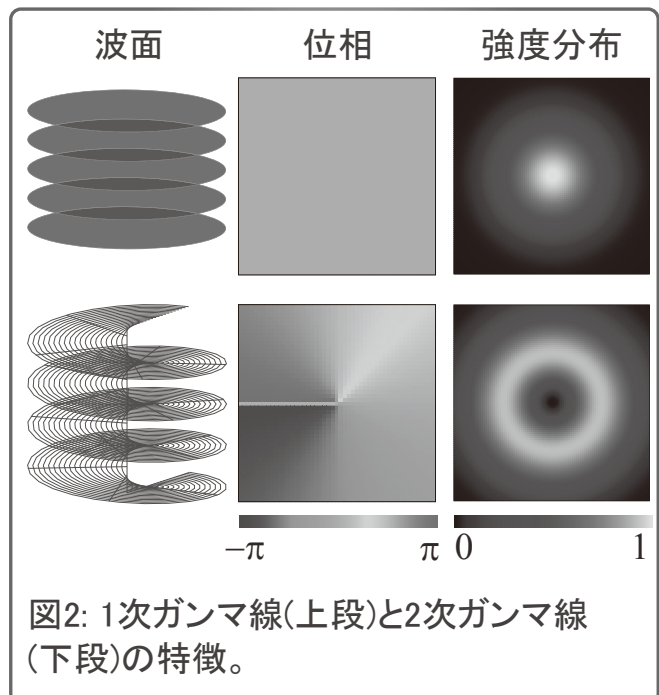


図2: 1次ガンマ線(上段)と2次ガンマ線(下段)の特徴。

[1] Y. Taira et al., *Scientific Reports*, 7, 5018 (2017).

[2] Y. Taira et al., *The Astrophysical Journal*, 860, 45 (2018).

URL: <http://unit.aist.go.jp/rima/>

## 二光子一光電子収量分光法(2P-PYS)の開発 :

### 機能性材料の励起状態の評価

ナノ分光計測研究グループ 細貝 拓也、松崎 弘幸、中村 健

#### 要旨

本研究では、有機半導体に代表される、フレキシブルかつプリンタブルなエレクトロニクスデバイスの有力な材料候補である機能性有機材料の研究・開発を支援するツールとして、材料の励起状態における電子準位を分析する新しい手法を提案する。パルスレーザを用いた二光子吸収と光電子放出現象を組み合わせることで、材料の励起状態におけるスピンを区別した励起状態のエネルギー準位を簡易に計測できることが可能となる。本報告では、そのような手法として考案された二光子一光電子収量分光法(2P-PYS)の研究開発状況を述べる。

#### 1. はじめに

低環境負荷で省エネルギーな電子デバイスの実現は、資源に乏しい我が国にとっての緊迫の課題である。この点、水素や炭素、窒素などの軽元素だけで構成される機能性有機材料は、次世代電子デバイスの最有力材料候補として長年注目を浴びている。事実、この 30 年間の世界的な基礎・応用両面の研究の取り組みによって、2017 年には究極のディスプレイと評される有機エレクトロニクスルミネッセンス(EL)が大型ディスプレイとして上市されるまでに至った。さらに現在も、人体埋め込み型の超薄型生体センサーディスプレイや塗布製作可能で軽量な有機太陽電池、希土類を全く使わない超低コストな有機蓄光材料などの開発が急速に進められている。機能性有機材料は技術革新の源泉として、今後ますます期待が高まっていくことが予想される。

一方、これに呼応するように計測技術の進展もデバイス・材料開発の点で望まれており、特に各種デバイスの機能化において最も重要な材料の反応状態(励起状態)を理解するための計測技術の開発が課題となっている。現在、その唯一の研究ツールとして二光子一光電子分光法(2PPE)が知られている。2PPE は励起状態の電子構造を高いエネルギー分解能で検出できるが、超短パルスレーザと光電子分光法技術を組み合わせた卓越した計測技術と真空・光学機器の収集、保守管理の困難さなど、その技術は学術的な利用に留まっているのが現状である。そこで我々は、新たな励起状態の研究手法として、光電子収量分光法(PYS)とポンププローブ分光法の技術を組み合わせた二光子一光電子収量分光法(2P-PYS)を提案して、その開発を進めている。<sup>1</sup> 2P-PYS は 2PPE に必要な超高真空環境を使わず、計測に光電子の閾値分光法を採用することで、非常に簡便に励起状態のエネルギー計測を実現することが期待できる (図 1)。

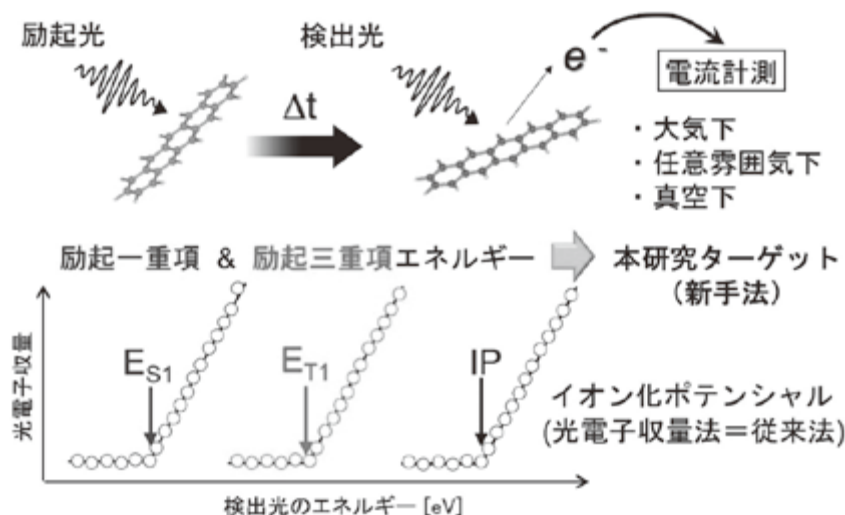


図 1. 2P-PYS の原理の概略図と計測技術の特徴 (上)、および従来法 (光電子収量分光法) とその比較 (下)。IP は基底状態、 $E_{T1}$  は最低励起三重項状態、 $E_{S1}$  は最低励起一重項状態からの光電子放出に必要なエネルギー閾値を示す。

## 2. 研究方法

PYS の計測は、試料の光電効果による電荷補償のためにアースから流れる微小電流を検出する。装置構成の概略は既報[1]を参照されたい。試料チャンバーは ICF70 キューブをベースとし、雰囲気制御のために大気下だけでなく超高真空にも対応している。試料ホルダーは SUS304 板を用いており、その上に試料を導電性両面テープで固定した。光電子の捕集電極は内径 10 mm、厚さ 2 mm の輪状の銅板として、試料面から目視で 1 mm 程度手前においた。この捕集電極はチャンバーを通してアースに接しており、試料側とは同軸のトリアキシャルコネクタで回路を接続している。光電子を捕集するための加速用および測定用の電源および電流計には Keithley 社のフェムト 6430 型サブフェムトアンペアリモートソースメータ(ノイズ性能: 0.4 fA)を用いた。測定プログラムは LabVIEW を用いて作成した。

測定試料には未洗浄の ITO コートガラス基板上に真空蒸着法 (真空度  $10^{-6}$  Pa) で作製した平均膜厚 15 nm のペンタセン( $C_{22}H_{14}$ , PEN)を用いた。膜厚と蒸着速度の計測には水晶振動子膜厚計を用いた。光源には Nd:YAG パルスレーザー(繰り返し周期 10 Hz、パルス幅 < 150 ps)の第三高調波(355 nm (=3.49 eV))を用いた。パルスレーザー光はそのままの照射、またはハーフミラーによってポンプ光とプローブ光に分け、遅延ステージを用いて遅延時間  $\Delta t$  を変えて試料に照射した。時間原点は二つの光照射によって光電子量が最大となる光路長から決定した。ポンプ光強度の調整には回転式反射型可変 ND フィルターを用いた。測定は全て室温、1 Pa 程度の真空下で行い、光電子の捕集効率を上げるために加速電圧 -200 V を試料に印加した。照射光強度の測定は OPHIR 社のエネルギーメータ (PE10-SH-V2) を用いた。

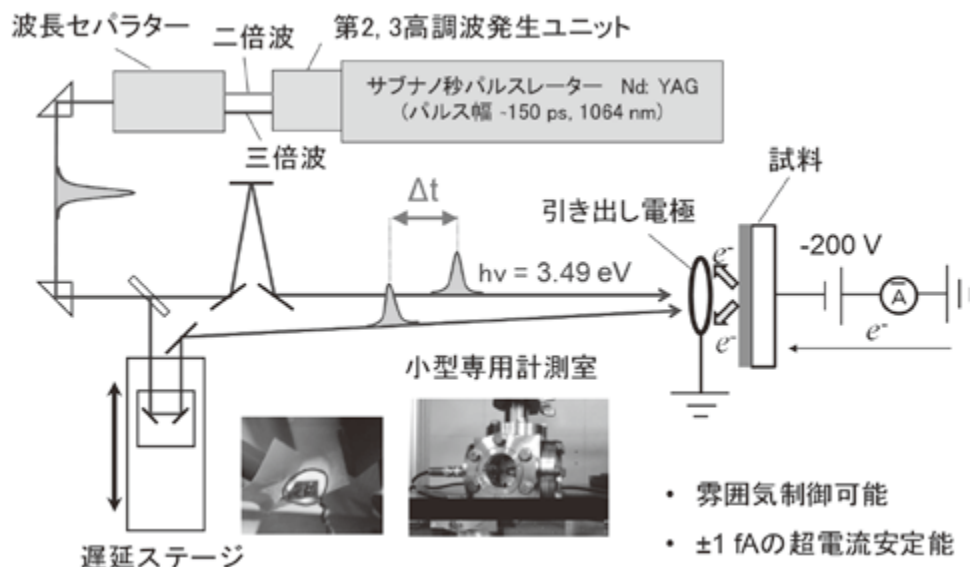


図 2. 2P-PYS 原理検証用のポンプ・プローブ光電子放出システム。右下には計測室（写真：中央下）の特徴を記す。

### 3. 研究結果と考察

図 3(a)に PEN/ITO 試料へ $\Delta t \sim 0$  秒でポンプまたはプローブ光を照射した時の電流値の変化を示す。この実験は連続的に次のステップの条件で行った。遮光下→ポンプ光のみ照射→プローブ光のみ照射→ポンプ光とプローブ光の同時照射→遮光下。各プロセスで得られた平均電流を  $I_{\text{dark}}$ 、 $I_{\text{pump}}$ 、 $I_{\text{probe}}$ 、 $I_{\text{pump\&probe}}$  とすると、それぞれ 12 fA、226 fA、69 fA および 465 fA の値が得られた。 $I_{\text{pump\&probe}}$  の値は  $I_{\text{pump}}$  と  $I_{\text{probe}}$  の合計値と一致しなかった。そこで、 $I_{\text{dark}}$  の値（オフセット値）を考慮して、 $I_{\text{pump\&probe}}$  において各単独光照射より過剰に流れた分の電流値( $\Delta I$ )を算出すると  $\Delta I = 182$  fA となった。これは二つの光の同時照射による非線形な電場強度の増大を反映したものであり、つまり二光子吸収によって過剰に生じた光電子放出分の電流が  $\Delta I$  として観測されたことを意味している。

次に、ポンプ光とプローブ光の強度を  $1.25 \text{ mW/cm}^2$ 、 $0.79 \text{ mW/cm}^2$  に固定して、 $\Delta t$  を走査しながらポンプ光によって生成した  $\Delta I$  を計測した(図 3(b))。  $\Delta t = 0$  ns 辺りの条件下では全半値幅 305 ps のガウス関数状の電流分布が見られた。この値は用いたパルスレーザの時間的な重ね合わせの値( $=150 \text{ ps} \times \sqrt{2}$ )におおよそ対応しており、二光子の同時吸収による光電子放出によるものと考えられる。一方、このガウス分布から十分離れた  $\Delta t$  の領域、つまりに二つのパルスは時間的な重なりから十分離れた状態においても 30 fA 程度の電流値が見られた。このことは、観測された電流値はポンプ光によって発生したペンタセン薄膜中の励起種からの光電子放出に起因していることを示唆している。

この可能性を検証するため、プローブ光の強度を一定( $2.46 \text{ mW/cm}^2$ )にして、ポンプ光の強度を変化させながら  $\Delta I$  を見積もった(図 3(c))。その結果、 $\Delta I$  はポンプ光の強度の一乗に比例した。これはすなわち、 $\Delta t = 0.5$  ns の条件で放出された光電子は基底状態からの二光子吸収過程ではなく、一光子吸収過程によって光電子放出が起こったことを示している。

すなわち、本計測システムにおけるポンプ・プローブ照射システムによって、ペンタセン薄膜の励起状態からの光電子放出が検出可能であることが実証された。

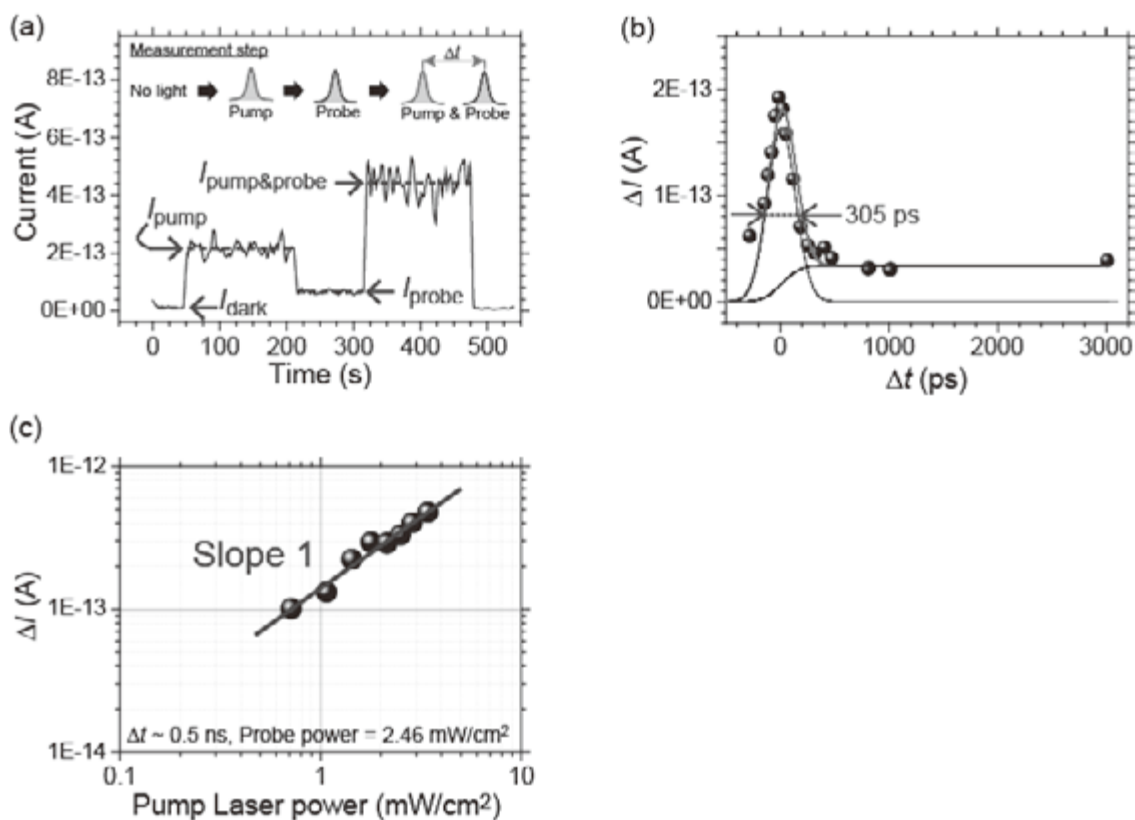


図 3. (a) PEN/ITO 試料を用いた低真空下(0.1 Pa)におけるポンプ・プローブ照射による光電子放出。ポンプ光とプローブ光のパワーはそれぞれ 1.25 または  $0.79 \text{ mW}/\text{cm}^2$  とした。(b) 励起状態からの光電子放出量  $\Delta I$  の遅延時間  $\Delta t$  依存性。黒線と青線はそれぞれガウス関数とステップ関数を用いてフィットした結果であり、赤線は二つのフィッティング結果の足し合わせたものを示す。ポンプ光とプローブ光のパワーは上述の(a)で用いた値とした。(c)  $\Delta t = 0.5 \text{ ns}$  の条件下において計測した  $\Delta I$  のポンプ光強度依存性。プローブ光の強度は  $2.46 \text{ mW}/\text{cm}^2$  とした。

#### 4. まとめ

近年、我々が報告した 2P-PYS の開発状況を概説した。0.1 Pa という低真空下において、有機半導体ペンタセンの励起状態からの光電子放出が十分に識別可能なことが本計測システムで示された。今後は、ポンプ光とプローブ光を分光することにより、当初の目的である励起状態電子巡視からの光電子放出の閾値計測が可能なが期待される。

#### 5. 謝辞

本研究は科学研究費補助金[16K17975]の支援によって行われた。

<sup>1</sup>T. Hosokai, H. Matsuzaki, A. Furube, K. Nakamura, Appl. Phys. Exp., 10, 022401 (2017).



# 二光子一光電子収量分光法(2P-PYS)の開発： 機能性材料の励起状態の評価

細貝 拓也、松崎 弘幸、○中村 健 ナノ分光計測研究グループ

## 1. 研究・開発の背景

- 各種の光変換材料の開発において、材料の反応状態におけるエネルギー制御は非常に重要です。
- 特に近年では、電子の『スピン状態』を区別した精密エネルギー制御のニーズが高まっています。
- 本研究では、『大気下で反応状態のエネルギー決定ができる』新しい分析法を開発しています。
- 本手法によって、これまでに難しかった光材料のスクリーニングが簡便になることが期待できます。

## 2. 研究・開発の内容

- 反応状態のエネルギー決定には、材料を光によって励起した後、各種のスピン状態が生成する時間帯で検出光を照射し、その状態で光電効果が生じる光のエネルギー閾値を計測します(図1)。
- 図2に二光子一光電子放出計測システム(2P-PYS)の概略図を示します。本装置では光学遅延ステージを用いて、二つに分けたパルスレーザー光を任意の遅延時間で照射し、光電子を電流値としてフェムトアンペアから検出することができます。

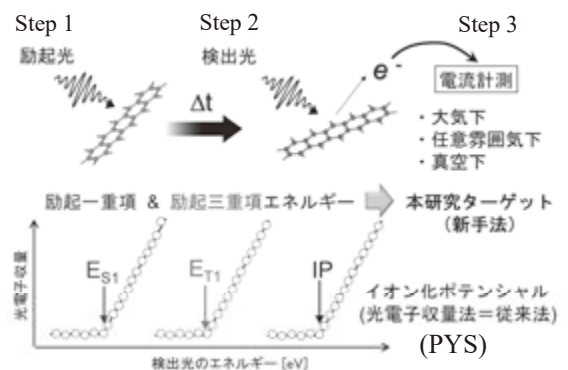


図1 光電効果を用いた反応(励起)状態のエネルギー計測

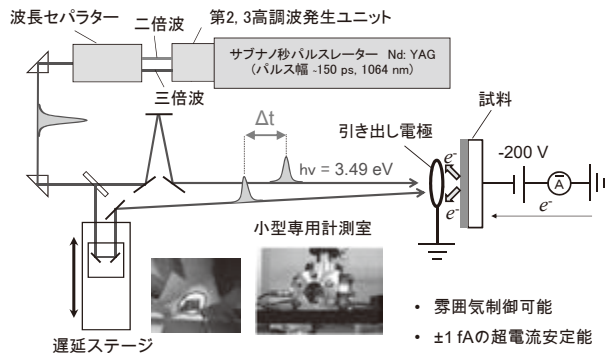


図2 2P-PYS装置の試作機の模式図

- 有機半導体ペンタセンを試料として、図2の装置を用いて低真空下で二光子照射の実験を行いました。(図3)。試料の励起三重項状態が生成している時間帯において光電子放出(図3の[---])を検出することに成功いたしました。

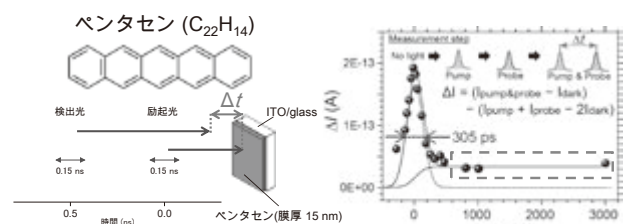


図3 ペンタセン薄膜から二光子-光電子放出の観測

## 4. 結論および今後の展開

これまでに独自の計測システムを開発して、有機半導体ペンタセン薄膜の励起三重項状態からの光電子放出の観測に成功しました。今後は以下のテーマに取り組めます。

- 光電効果エネルギー閾値分光計測のための、白色レーザーパルスの作製と計測システムの構築
- 閾値分光のデモンストレーション
- 汎用計測システムの開発と技術移転、高度化のための要素開発

本研究はJSPS科研費 16K17975  
の助成を受けたものです。



URL: <http://unit.aist.go.jp/rima/>

# イオン液体を用いた反応性クラスター集束イオンビーム源の開発

ナノ顕微計測研究グループ 藤原 幸雄、齋藤 直昭

## 要旨

二次イオン質量分析 (SIMS) 用の一次イオンビーム源として、イオン液体を真空中でエレクトロスプレーする方式を用いたクラスターイオンビーム源の研究開発を進めている。集束性の向上が期待されることからニードル型エミッターを用い、また、プロトン付加反応を促進するためプロトン性イオン液体の一種である硝酸プロピルアンモニウムをビーム化して SIMS 分析を実施した。イオンビーム中のプロトンが分析試料中の有機分子に付着してプロトン化分子が生成され、二次イオン強度を増大できることがわかった。

## 1. はじめに

二次イオン質量分析法 (Secondary Ion Mass Spectrometry: SIMS) は、イオンビームを試料表面に照射し、スパッタリングによって放出される試料原子 (あるいは分子) の二次イオンを質量分析することにより、試料構成元素 (あるいは分子) の同定ならびに濃度測定を行う分析法である (図 1)。

分析対象が無機材料の場合には、酸素 ( $O_2^+$ ) やセシウム ( $Cs^+$ ) あるいはガリウム ( $Ga^+$ ) 等のイオンビームが用いられ、条件を選べば高い面分解能 ( $\sim 50$  nm 程度) の SIMS 分析が可能となっている。一方、有機材料の場合には、イオンビーム照射に起因する有機分子の結合の開裂や断片化 (=フラグメンテーション) が避けられず、分子量の大きな二次イオンはほとんど検出できないという問題があった。

しかし、近年では、クラスターイオン ( $C_{60}^+$  や  $Bi_3^+$  など) を一次イオンビームとして用いることで、比較的大きな有機分子 (分子量: 数百 $\sim$ 2,000 u 程度) も検出できるようになり、半導体産業のみならず、化学分野等においても、SIMS の応用範囲が広がっている (= “クラスターSIMS” と呼ばれる)。

最近では、“ガスクラスター” や “水溶液の帯電液滴” などの非常に大きなクラスターイオンを SIMS 用一次イオンビームとして用いることで、1 万 u を超える大きな分子も検出できるようになり、化学やバイオメディカル分野においても SIMS 分析が応用されつつある。しかし、非常に大きな質量を有するこれらのクラスターイオンビームのビーム径は

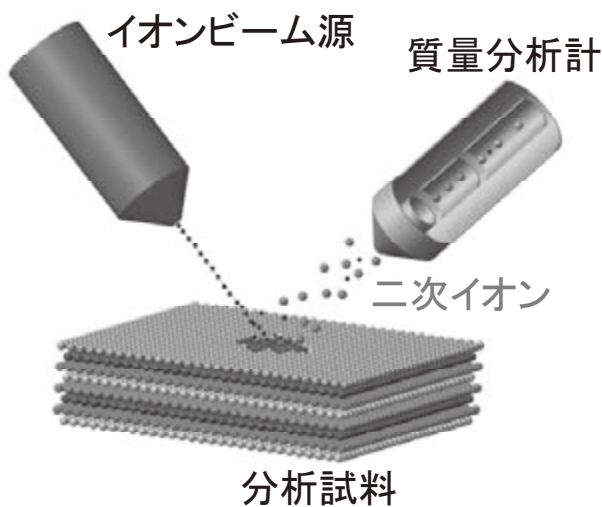


図 1. 二次イオン質量分析(SIMS)の原理図

太く、高い面分解能でのイメージング測定は困難となっている。このため、大きな質量を有するクラスターイオンを集束性良くビーム化する技術の開発が喫緊の課題となっている。

## 2. 研究方法

エレクトロスプレー法は、電解液中から帯電液滴や多原子イオンを気相中に取り出すことを可能とするため、質量分析技術におけるイオン化法のみならず、SIMS 用の一次イオンビーム生成技術としても有望である。しかし、大気中でエレクトロスプレーする場合には、大気中でのイオン発散の影響が大きく、集束性の良いビームを生成することは難しい。集束性の良いビームを生成する観点からは、真空中でのエレクトロスプレーが有効となる。一方、(蒸気圧の無視できない) 一般的な電解液を用いる場合には、蒸発と凍結が繰り返されるため真空中での安定なエレクトロスプレーは容易ではない。

そこで我々は、(蒸気圧のほとんど無い) “イオン液体 (Ionic liquid)” を高真空中でエレクトロスプレーする方式のイオンビーム源を提案し、研究開発を進めている。

<sup>1-3</sup> (図 2) イオン液体は、室温においても液体状態である“塩 (えん)”の総称である。蒸気圧がほとんど無いため、真空中でも蒸発せずに液体として存在し、またそれ自体がイオン性の液体であるため、高真空中においてもエレクトロスプレーが可能であることが大きな特徴である。(ちなみに、水やメタノールのような蒸気圧が無視できない液体の場合には、蒸発や凍結が発生するため真空中での安定なエレクトロスプレーは難しい。)

イオン液体は多種多様なものが存在し、プロトン性のものと非プロトン性のものに分類される。既に、非プロトン性のイオン液体として、四級アンモニウム系の[DEME][TFSA] (分子量 426、陽イオン  $C_8H_{20}ON^+$ 、陰イオン  $N(SO_2CF_3)_2^-$ ) やイミダゾリウム系の[EMIM][TFSA] (分子量 391、陽イオン  $C_6H_{11}N_2^+$ 、陰イオン  $N(SO_2CF_3)_2^-$ ) を用いて実験を行っている。<sup>4-10</sup> また、プロトン性イオン液体としては、[dema][TfO] (分子量 237、陽イオン  $C_5H_{14}H^+$ 、陰イオン  $CF_3SO_3^-$ ) や硝酸プロピルアンモニウム (分子量 122、陽イオン  $C_3H_7NH_3^+$ 、陰イオン  $NO_3^-$ ) を用いたイオンビーム生成実験を行っている。<sup>11-14</sup> さらに、硝酸プロピルアンモニウムを用いて SIMS 実験を行ったところ、正イオンモードではプロトン付加反応やプロピルアンモニウム ( $[C_3H_7NH_3]^+$ ) 付加反応による二次イオン生成効果が確かめられた。負イオンモードでは、有機分子からプロトンを引き抜く作用(脱プロトン化)による負イオン生成や硝酸イオン ( $[NO_3]^-$ ) が付加する反応によっても二次イオン

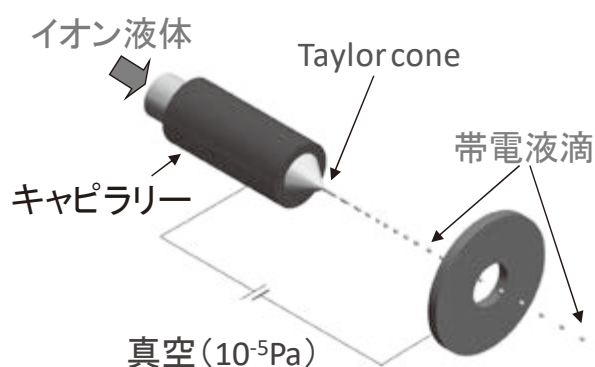


図 2. 真空エレクトロスプレーを用いたイオン液体ビーム源の概念図

生成が可能であることも明らかとなっている。<sup>13</sup>

これまで筆者らは、エレクトロスプレー部としてキャピラリー（細管）を用いてビーム生成を行ってきた。一方、集束性ビーム生成の観点からは、液体金属イオン源と同様にニードル（針）を用いた方式の方が有利と考えられる。

本シンポジウムでは、集束性の向上が期待されるニードル型エミッターからのビーム生成ならびに SIMS 実験について報告する。ニードル型エミッターとしてはガラス棒を用いた。表面を粗くして濡れ性を高め、プーラーにより先端を尖らせたものを使用した。ガラス棒の表面を硝酸プロピルアンモニウムで濡らし、その先端に電界を印加して真空エレクトロスプレーによりビームを生成した。（図 3）<sup>14</sup> さらに、イオン液体ビーム源を TOF-SIMS 装置に取り付け、有機系試料の SIMS 分析を行った。

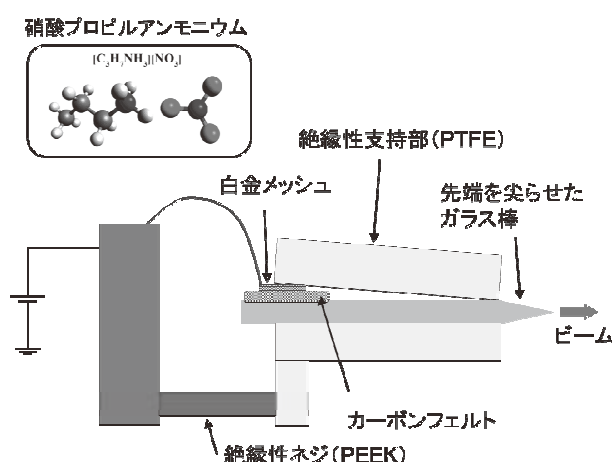


図 3. ニードル型エミッターの概念図

### 3. 研究結果と考察

図 4 は、アミノ酸の一種であるアルギニン（分子量 174.1）に対して硝酸プロピルアンモニウムのイオンビームを照射して得られた SIMS 結果である。<sup>14</sup> アルギニン分子にプロトン ( $H^+$ ) が付加したプロトン化分子 ( $[Arg+H]^+$ 、 $m/z$  175.1) が大きな信号として検出された。硝酸プロピルアンモニウムがプロトン供給源として試料分子にプロトンを供給し、プロトン化分子を効率よく生成できたためと考えられる。<sup>14</sup>

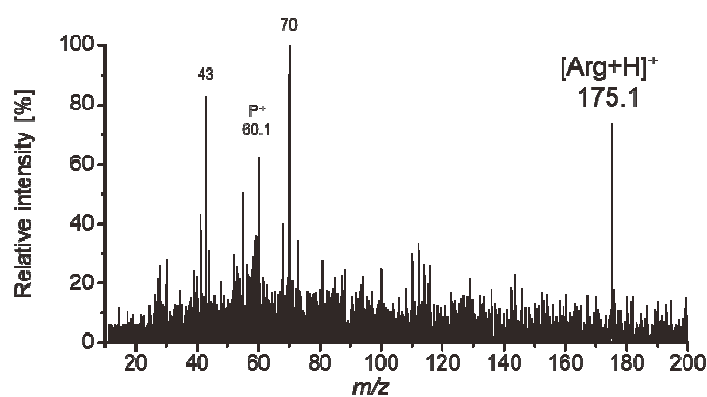


図 4. アルギニンの SIMS マスペクトル

### 4. まとめ

二次イオン質量分析 (SIMS) 用の一次イオンビーム源として、プロトン性イオン液体を真空中でエレクトロスプレーさせる方式を用いたコンパクトかつ高集束性のクラスターイオンビーム源の研究開発を進めている。開発したイオン液体ビーム源を用いて SIMS 分析を実施し、イオン液体ビーム照射によって有機試料の SIMS 分析が可能であることを確

認した。また、硝酸プロピルアンモニウムなどのプロトン性イオン液体は、プロトン供給源として作用しプロトン化の促進効果を持つため、有機系試料の SIMS 分析に有用であることがわかった。今後は、クラスターイオンビームの集束性化に取り組む予定である。

<sup>1</sup> Y. Fujiwara et al., Proc. 7th Int. Symp. Atomic Level Charact. for New Materials and Devices, 2009, p471.

<sup>2</sup> Y. Fujiwara et al., Vacuum 84, 544 (2010) .

<sup>3</sup> Y. Fujiwara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 48, 126005 (2009) .

<sup>4</sup> Y. Fujiwara et al., Nucl. Instr. and Meth.B, 268, 1938 (2010).

<sup>5</sup> Y. Fujiwara et al., Chem. Phys. Lett., 501, 335 (2011).

<sup>6</sup> Y. Fujiwara et al., Jpn. J. Appl. Phys., 51, 036701 (2012).

<sup>7</sup> Y. Fujiwara et al., J. Appl. Phys., 111, 064901 (2012).

<sup>8</sup> Y. Fujiwara et al., Surf. Interface Anal. 45, 517 (2013).

<sup>9</sup> Y. Fujiwara et al., e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 12, 119 (2014).

<sup>10</sup> Y. Fujiwara and N. Saito, Surf. Interface Anal. 46, 348 (2014).

<sup>11</sup> Y. Fujiwara and N. Saito, Appl. Phys. Express 8, 076601 (2015).

<sup>12</sup> Y. Fujiwara and N. Saito. Rapid Commun. Mass Spectrom. 30, 239 (2016).

<sup>13</sup> Y. Fujiwara and N. Saito. Rapid Commun. Mass Spectrom. 31, 1859 (2017).

<sup>14</sup> Y. Fujiwara and N. Saito. Rapid Commun. Mass Spectrom. *to be published*.



# イオン液体を用いた反応性クラスター 集束イオンビーム源の開発

○藤原 幸雄, 齋藤 直昭 ナノ顕微計測研究グループ

## 1. 研究・開発の背景

二次イオン質量分析(SIMS)は、一次イオンビームを試料表面に照射することで生じた二次イオンを質量分析し、元素や分子の同定ならびに濃度測定を行う表面分析法である。

近年、クラスターイオンビームを用いることで、有機系の大きな分子も検出できるようになり、シリコンなどの無機材料のみならず、有機材料等に対しても応用範囲が広がっている。

## 2. 研究・開発の内容

有機材料のSIMS分析では、通常ビスマス(Bi)などの液体金属クラスターイオン源が用いられているが、感度の低さが課題となっている。

有機分子を高感度に質量分析するためには、プロトン付加反応の促進が有効である。そこで我々は、反応性プロトンを内包する溶融塩(プロトン性イオン液体)のイオンビーム化に取り組んでいる。

プロトン性イオン液体としては、硝酸プロピルアンモニウムを用いた。高集束性を特徴とする液体金属イオン源を参考として、ニードル型エミッターを用いたイオン源の開発を進めている。

## 3. 結論および今後の展開

質量電荷比( $m/z$ )が5,000を超える巨大クラスターイオンを含むビーム生成に成功した。また、SIMS実験の結果、プロトン付加の二次イオン等を高強度で生成可能なことも確認できた。

今後は、クラスターイオンビームの高集束化等に取り組む予定である。

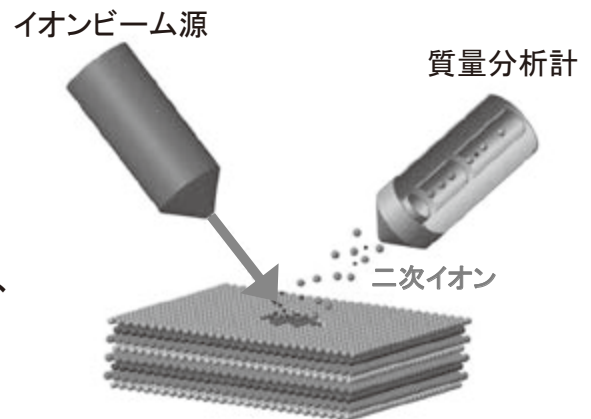


図1: 二次イオン質量分析(SIMS)の原理図

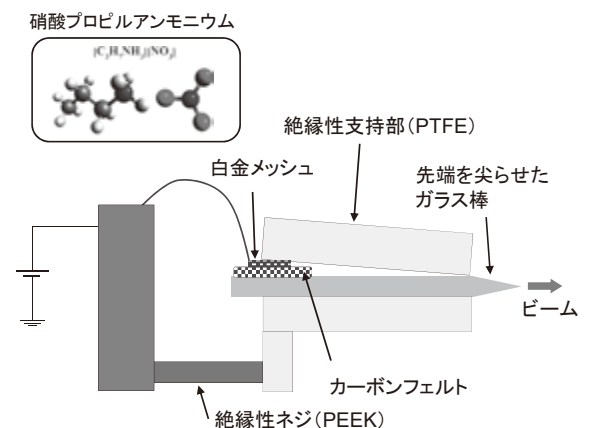


図2: 液体金属イオン源を参考としたニードル型エミッター(概念図)

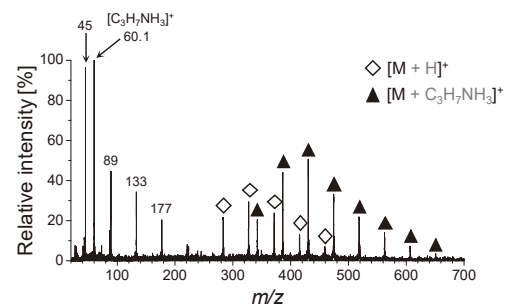


図3: プロトン性イオン液体ビーム照射を用いたSIMS分析の結果  
(試料: ポリエチレングリコール PEG300)

## 先端分析計測でナノ材料などの開発を支援

分析計測標準研究部門 齋藤 直昭<sup>1</sup>  
ナノエレクトロニクス研究部門 松林 信行<sup>1</sup>  
産総研ナノ計測施設(ANCF)<sup>1</sup>

産総研では、国内の産業力強化と新産業創出の先導や社会イノベーションへの貢献を目指して、先端計測分析技術を開発しています。開発した装置や技術は、産総研ナノ計測施設(ANCF)<sup>1</sup>において公開しています。ANCFの公開装置は次の7種類です。

1. 陽電子プローブマイクロアナライザー(PPMA)
2. 超伝導蛍光収量 X線吸収微細構造分析装置(SC-XAFS)
3. 可視・近赤外蛍光寿命計測装置(VITA)
4. リアル表面プローブ顕微鏡(RSPM)
5. 固体 NMR 装置(SSNMR)
6. 極端紫外光光電子分光装置(EUPS)
7. 超伝導蛍光 X線検出器付走査型電子顕微鏡(SC-SEM)



図 1. 陽電子プローブマイクロアナライザー

これらの大半の装置は市販装置ではなく、産総研で独自に開発した計測装置や技術です。たとえば、陽電子プローブマイクロアナライザー(図 1)は、電子加速器から生成した陽電子マイクロビームを用いる大型装置であり、世界的には他にドイツに類似の装置があるだけです。また、超伝導蛍光収量 X線吸収微細構造分析装置や超伝導蛍光 X線検出器付走査型電子顕微鏡は、従来の半導体検出器に代えて産総研が開発した超伝導検出器を搭載することで既存装置を上回る分解能と感度を実現している世界的に希少な装置です。極端紫外光光電子分光装置はレーザー生成プラズマからの極端紫外パルス光を光源とし、飛行時間法で電子分光する世界で唯一の光電子分光装置です。過渡吸収分光装置、リアル表面プローブ顕微鏡装置や NMR 装置は、基本装置は市販製品ですが、それらを精巧に合わせ、かつ、高技能な試料調整法等と解析法を適用することで、他を凌駕する性能の計測を実現しています。

ANCF は、TIA、および、文部科学省事業のナノテクノロジープラットフォーム・微細構造解析プラットフォームの双方に参画し、産学官の利用者ニーズに対応した研究支援を実施して、世界トップレベルの研究や産業応用に貢献しています。計測のご要望があれば、産総研 ANCF の窓口へお気軽にお問い合わせください。

<sup>1</sup> 産総研 ANCF の HP : <https://unit.aist.go.jp/rima/nanotech/index.html>

# 先端分析計測でナノ材料等の開発を支援

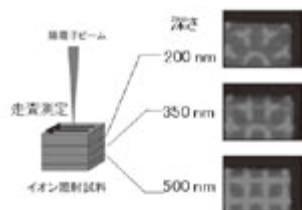
## 研究のポイント

- 独自開発の先端計測分析機器や解析手法を公開
- 市販計測分析装置では対応不可能な課題解決にチャレンジ
- 企業や大学の研究開発を支援してイノベーションを促進

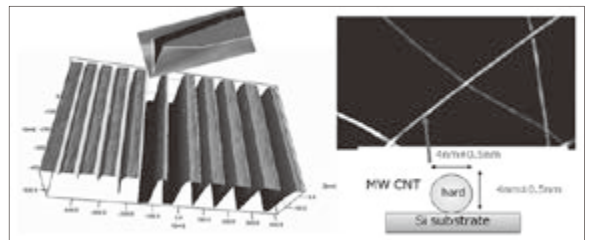
## 研究目的

産総研先端ナノ計測施設（ANCF）は、TIA(オープンイノベーション拠点)、イノベーション創出機器共用プラットフォーム(IBEC)、および、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業微細構造解析プラットフォームに参画し、全国からの計測の要望に幅広く対応しています。

## 研究内容



PPMA 空孔の3D分布



RSPM カーボンナノチューブのサイズ測定例



EUPS

### 公開7装置群

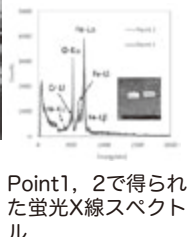
- ・陽電子プローブマイクロアナライザー(PPMA) : ナノ空孔
- ・リアル表面プローブ顕微鏡(RSPM) : ナノ表面構造
- ・可視・近赤外過渡吸収分光(VITA) : 原子、電子状態
- ・固体核磁気共鳴(SSNMR) : 固体材料局所構造
- ・X線吸収微細構造(SC-XAFS) : 局所構造、電子状態
- ・極端紫外光光電子分光(EUPS) : ナノ表面物性
- ・超伝導蛍光X線検出器付SEM (SC-SEM) : 軽元素マッピング



SSNMR



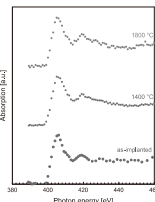
SC-SEM



Point1, 2で得られた蛍光X線スペクトル



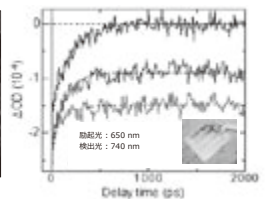
SC-XAFS



NドープSiC(300 ppm)のXANESスペクトル



VITA



有機薄膜太陽電池材料の過渡吸収の減衰挙動

分析計測標準研究部門 ANCF

担当者：齋藤直昭

連絡先：ancf-contact-ml@aist.go.jp



分析計測標準研究部門 第4回シンポジウム

「極限計測・分析が加速する研究開発イノベーション」 JASIS2018 コンファレンス 報告集

---

2018年10月30日 発行

編者 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 計量標準総合センター 分析計測標準研究部門内  
「第4回分析計測標準研究部門シンポジウム」実行委員会

野中 秀彦、齋藤 直昭、権太 聡、丸山 真澄、徳宿 由美子、吉田 明子

TEL: 029-861-5300 FAX: 029-861-5881

URL: <https://unit.aist.go.jp/rima/index.html> e-mail: [rimsympo-ml@aist.go.jp](mailto:rimsympo-ml@aist.go.jp)

発行者 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 計量標準総合センター 分析計測標準研究部門

発行所 国立研究開発法人 産業技術総合研究所

305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1 つくば中央第二

---

著者または編者の許可なく本予稿集の全部もしくは一部を転載あるいは複製することを禁じます。

Printed in Japan

