

低速陽電子ビームの発生とその表面研究への応用

鈴木 良一・大平 俊行

電子技術総合研究所 ☎ 305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-4

(1999年2月8日受付)

Generation of Slow-Positron Beams and Their Applications to Surface Studies

Ryoichi SUZUKI and Toshiyuki OHDAIRA

Electrotechnical Laboratory

1-1-4 Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8568

(Received February 8, 1999)

Positron has various unique properties, e.g., positive charge, annihilation with electrons, emission of annihilation gamma ray, positronium formation, etc. These unique properties provide us with new information on surface and sub-surface regions. In recent years, generation techniques of intense slow-positron beams have been developed and those beams have been applied to various surface studies. In this article, we briefly introduce slow-positron generation techniques and measurement techniques for surface studies.

1. はじめに

電子の反粒子である陽電子は、電子と同じ質量と電荷の絶対値を持ちながら、正の電荷、電子との対消滅、消滅ガンマ線の放出、電子と陽電子の束縛状態であるポジトロニウムの形成など電子とは異なった特異な性質を有する。これらの性質を固体の表面研究に利用すると、従来の表面の研究手法では得られないような知見、あるいは電子ビームによる表面研究手法に対して相補的な知見を得ることができる。

従来、陽電子は主に固体の内部の格子欠陥やフェルミ面などの電子状態の研究に用いられてきたが¹⁾、近年、表面研究に適した低速陽電子ビームを効率良く生成する技術とそれのマイクロビーム化や短パルス化などの制御技術が開発され、低速陽電子ビームを用いたさまざまな表面研究が可能になってきている。本稿では、陽電子の特異な性質について概説するとともに、低速陽電子ビームの発生法とそれを用いた各種表面研究手法について述べる。

2. 陽電子の性質

Fig. 1 に陽電子が固体に入射した時の表面および表面近傍での挙動の模式図を示す。陽電子は、固体に入射すると急速にエネルギーを失って、熱平衡エネルギー (kT , k はボルツマン定数, T は絶対温度) になる (熱化)。入射エネルギー E (keV) の陽電子の平均侵入深さ $\bar{z}$ は均質な固体の場合、(1) 式で近似される。

$$\bar{z} = AE^n / \rho \quad (1)$$

ここで、 ρ は試料の密度 (g/cm^3) である。 A と n は定数で、一般に $A = 4.0 \mu\text{g cm}^{-2} \text{keV}^{-n}$, $n = 1.6$ とすることが多い²⁾。陽電子の侵入深さ z に対する分布 $P(z)$ は、経験的に、低速陽電子の実験で用いられる 0~数十 keV のエネルギー範囲では以下の式のようになることが知られている³⁾。

$$P(z) = \frac{2z}{z_0^2} \exp \left[- \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right] \quad (2)$$

ここで、 $z_0 = 1.128 \bar{z}$ である。

熱化した陽電子は、その後固体中を拡散する。拡散の途中に陽電子を捕獲するような欠陥が無ければその物質固有の寿命で電子と対消滅する。欠陥が存在するとそこに捕獲される場合がある。空孔型欠陥では電子密度が低

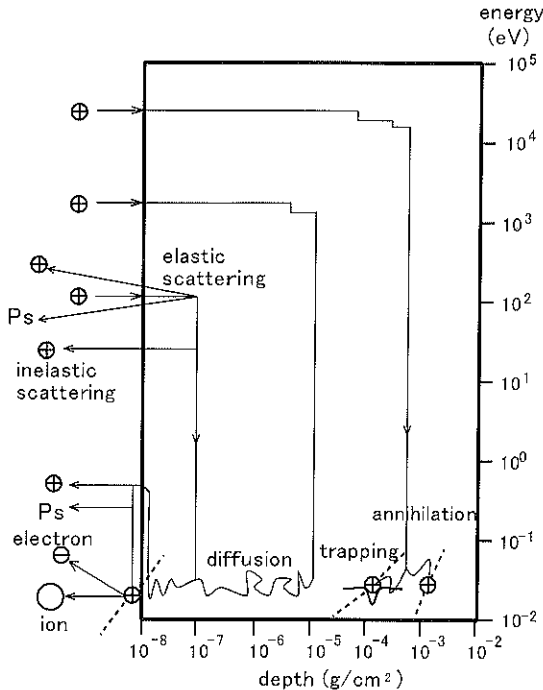


Fig. 1 Schematic of positron interactions at a surface.

いことから、捕獲されない場合の寿命より長い寿命で対消滅する。また、空孔型欠陥では内殻電子より価電子との消滅割合が多くなる。陽電子の寿命や価電子との消滅割合は、単一原子空孔や複原子空孔など小さな欠陥では欠陥の大きさに対して敏感に変化する。

0.3 nm 程度以上の大きさの空隙や表面などの電子密度の低いところでは電子と陽電子が水素原子に似た束縛状態であるポジトロニウム (Ps) を形成する場合があります、この消滅過程は束縛されない陽電子の消滅過程と異なる。Ps はスピンの向きによってパラ Ps とオルソ Ps が存在する。真空中ではパラ Ps とオルソ Ps の寿命は大きく異なり、それぞれ 125 ps と 142 ns である。固体の空隙中では、Ps を構成する陽電子と空隙表面の電子とのピックオフ (pick-off) 消滅や Ps を構成する電子と空隙表面のスピンの異なる電子との交換反応 (スピン交換反応) などの Ps と空隙表面の電子との相互作用により対消滅の寿命が変化する。スピン交換反応は、スピン交換する電子を提供するもの、たとえば共有結合性物質では空隙表面にダングリングボンドなどがある場合に起こる。空隙表面にそのようなものが無い場合、ピックオフ消滅が主となる。オルソ Ps のピックオフ消滅の寿命は空隙の大きさに依存し、数 nm までの大きさの空隙に対して寿命と空隙サイズの対応関係が知られている⁴⁾。

対消滅時には、電子と陽電子の質量分のエネルギーがガンマ線として放出される。このガンマ線は、通常 511 keV のエネルギーで 180 度方向に 2 本放出されるが、電子・陽電子対の運動量によってエネルギーや放出角がわずかに変化する。したがって、消滅ガンマ線のエネルギーや 2 本のガンマ線の放出角を精密に測定することによって、消滅相手の電子の運動量について知ることができる。また、ガンマ線の放出時刻を精密に測定することにより、陽電子の寿命を知ることにもできる。ガンマ線は物質を透過しやすいことから、消滅ガンマ線を測定することによって物質内部の情報を非破壊で得ることができる。

陽電子の入射エネルギーが低い場合、拡散の途中に表面に到達するものがある。表面に到達した陽電子は、金属などでは表面の鏡像ポテンシャルに捕獲されて表面を動き回るうちに表面の電子と対消滅する。陽電子の仕事関数が負の物質では表面から真空中に放出される陽電子もある。

表面で陽電子が電子と消滅する場合、一部は表面を構成している原子の内殻電子と消滅することから、内殻準位が励起されてオージェ電子を放出する場合がある。また、消滅時に表面からイオンが脱離する場合もある。そのほか、電子と同じように、弾性散乱や非弾性散乱によって表面から飛び出す陽電子もある。さらに、陽電子が電子と結合して Ps を形成し表面から飛び出す場合もある。

このような陽電子の性質を利用することによって表面および表面近傍の物性を調べることができる。

3. 陽電子の発生

物性測定に用いられる陽電子の発生法は、放射性同位元素 (RI) 線源の β^+ 崩壊によるものと、高エネルギー光子 (X 線、ガンマ線) から電子・陽電子対生成によって発生するものと大別される。Table 1 に各種陽電子発生法を示す。

RI 線源の β^+ 崩壊を用いた陽電子の発生法は、 ^{22}Na などの半減期の長い市販の β^+ 崩壊 RI 線源による方法とイオン加速器あるいは原子炉で短寿命の β^+ 崩壊 RI 線源を生成してその場あるいは近くの実験室に輸送して陽電子ビームを発生する方法^{5, 6)}がある。

^{22}Na などの半減期の長い β^+ 崩壊 RI 線源による低速陽電子の発生装置は、コンパクトなものが開発されており、比較的容易に導入できるが、低速陽電子ビームとしての強度 (10^5 – 10^6 個/秒) が低く可能な測定法に限られる。一方、イオン加速器や原子炉を用いた陽電子の発生は、実験場所が限られるという問題はありますが、市販の RI 線

Table 1 Positron generation methods for material researches.

	β^+ decay	pair creation	slow e^+ intensity (e^+/s)
RI source (commercially available)	○		10^5 – 10^6
Ion accelerator	○		10^6 – 10^9
Atomic reactor	○	○	10^7 – 10^{10}
Electron accelerator		○	10^7 – 10^{10}
Wiggler in SR ring		○	$\sim 10^8$

源による方法より強度の高い低速陽電子ビームを発生することができる。これらのRIを利用する方法は、スピンの偏極した低速陽電子ビームが得られることから、磁性材料などの研究への利用も期待されている⁷⁾。

高エネルギー光子の電子・陽電子対生成を利用した発生法としては、電子線形加速器などの高エネルギー電子ビームを陽電子コンバータ（重金属ターゲット）に入射し制動放射X線を発生し対生成反応を起こすもの⁸⁾、原子炉で発生する中性子を用いて高エネルギーのガンマ線放出核種を作りそのガンマ線から対生成によって陽電子を生成するもの⁹⁾、放射光（SR）リングにウィグラーを設置して高エネルギーX線を発生してそれを対生成させるものなどがある。この中で、電子線形加速器を用いた陽電子発生法が現在最も高い低速陽電子強度を得ることができる方法として実用化されている。

4. 低速陽電子ビームの生成（陽電子の減速）

陽電子を用いて表面の研究を行う場合、エネルギーの低い陽電子、つまり低速陽電子が必要である。しかし、RI線源や陽電子コンバータから放出される陽電子はエネルギーが高い（数百keV）ことからそのままでは表面研究に用いることはできない。そこで、陽電子減速材によってエネルギーの高い陽電子を減速し、数eV以下の低速陽電子を生成する。

この減速材には、陽電子に対して負の仕事関数を有する物質が用いられる。前述のように陽電子は固体に入射するとすぐに熱化し、一部の陽電子は拡散で表面に到達する。この時、表面の仕事関数が負であると陽電子は表面から外に放出される（再放出）。再放出陽電子のエネルギーは数eV以下であり、これを加速・収束・パルス化などを行うことによって、表面研究に適した陽電子ビームとすることができる。

陽電子減速材は、表面の清浄化が容易なこと、欠陥を取り除きやすいこと、密度が大きいこと、再放出割合が大きいこと、などの理由からタングステンが最も一般的に利用されている。また、希ガス固体、ダイヤモンド、SiC、GaNなどのワイドバンドギャップ型の減速材は、

金属の減速材より再放出陽電子の単色性は劣るが再放出割合が高いことから、筆者らは今後の進展に注目している¹⁰⁾。

一般に、RI線源や陽電子コンバータから放出される高エネルギー陽電子を減速した場合の低速陽電子のビーム径は数mmあり、そのまま測定に用いる場合もあるが、回折などの実験にとって径が大きすぎる。そこで、一度減速した陽電子を数keVに加速してビームを絞り、再び陽電子減速材に入射し、減速材から再放出された陽電子を引き出すことによって細いビーム径の陽電子ビームを発生する手法が用いられる。この手法では、強度は1/4程度に減るが、ビーム径は1桁以上小さくなることから、ビームの輝度は向上する（高輝度化）¹¹⁾。さらに多段の高輝度化を行うことによってマイクロビームにする技術も開発されている¹²⁾。

5. 低速陽電子ビームを用いた表面および表面近傍の測定法

低速陽電子ビームを用いた表面および表面近傍の測定法にはさまざまな方法があるが、大別すると、電子ビームと同様な測定原理に基づくもの、対消滅ガンマ線を検出するもの、表面での陽電子消滅あるいは再放出現象を利用するもの、表面Psを利用するものなどがある。Table 2に各種の測定法について示した。

5.1 電子ビームと同様な原理に基づく測定法

低速陽電子は、電子と同じ質量・同じ電荷の絶対値を有することから、電子と同様に加速、収束などを行うことができ、電子ビームと同様に回折やエネルギー損失などの測定を行うことができる¹³⁾。

低エネルギー陽電子線回折（Low Energy Positron Diffraction, LEPD）は低速電子線回折（LEED）に比べて以下のような特徴を有する。

1. 陽電子は正電荷を有するために原子核から斥力をうけポテンシャルの平坦な格子間位置に存在する確率が高いことから、電子に比べて弾性散乱断面積が適度に小さく多重散乱が起こりにくい。
2. 同様の理由から陽電子と内殻電子との相関相互作用

Table 2 Various slow-positron measurement techniques for surface studies.

Same measurement techniques as electron beams	
• Low energy positron diffraction (LEPD)	
• Reflection high energy positron diffraction (RHEPD)	
• Positron energy loss spectroscopy (PELS)	
Detecting annihilation radiation	
• Positron lifetime spectroscopy	
• Doppler broadening of annihilation radiation	
• Angular correlation of annihilation radiation	
Using annihilation at surfaces or re-emission	
• Positron-annihilation induced Auger electron spectroscopy (PAES)	
• Positron-annihilation induced ion desorption	
• Re-emitted positron spectroscopy	
Positronium measurements	
• (Angle-resolved) positronium spectroscopy	
• Positronium molecule formation measurement	

も無視できるぐらいに小さい。また、LEPDでは交換相互作用は無視できる。これによって理論計算との比較が容易になる。

- 陽電子の仕事関数は負の場合もあり、その絶対値は電子に比べて小さい。そのため、陽電子が固体内外で感ずる電位差が小さく最低次指数面の回折も観測できる。
- 散乱してきた陽電子と二次電子との区別ができるため、S/N比が電子に比べて飛躍的に高い。それゆえ測定に必要な電荷量は低く、帯電を少なくできる。

これらの特徴を生かして、CdSe、CdTe等の表面のLEPDとLEEDの比較実験がなされ^{14, 15)}、LEPDでは理論計算との一致がLEEDに比べて極めて良いことが報告されている。

また、反射型高エネルギー陽電子線回折 (Reflection High Energy Positron Diffraction, RHEPD) も反射高速電子線回折 (RHEED) に対して優れた利点を有することが予測されている¹⁶⁾。つまり、RHEEDでは電子に対する結晶ポテンシャルは負であり結晶に入射したときに加速されるために最低次のブラッグ反射は観測されないが、RHEPDは最低次を含めた全回折を観測できる。また、反射強度も最低次のブラッグ反射の出現によりRHEEDより大きいことも予測されている。さらに、表面の仕事関数が負であれば、RHEPDでは全反射の領域が存在する。この場合、陽電子は結晶内部には侵入しないため、より表面に敏感な回折像を得ることができる。水素終端したシリコン表面のRHEPDの実験からこれらのRHEPDの特徴のいくつかが実証されてきている^{17, 18)}。

エネルギー損失のスペクトル測定において陽電子ビー

ムを用いた場合の特徴は、電子と同じ質量やスピンを持ちながら、固体中では電子とは異なる異種粒子であり入射粒子と放出粒子の同一性が保証できるという点である。これによって二次電子成分のない真のエネルギー損失のスペクトルを測定することができる。

これらの測定法は、電子ビームによる測定法に対して相補的な情報を与えるだけでなく、より表面に敏感な場合もあることから、電子ビームによる測定ではバルクの影響などのために難しかった測定も可能になるものと期待されている。

5.2 陽電子消滅ガンマ線を検出する測定法

2節で述べたように、消滅ガンマ線が情報伝達媒体となることを利用して、陽電子が消滅した位置付近における微視的構造 (特に空孔型格子欠陥) や電子状態に関する情報を得ることができる。この性質を利用した測定法として、陽電子寿命測定、消滅ガンマ線ドップラー拡がり測定、消滅ガンマ線角相関測定などがある。これらの測定法は、従来から高エネルギー陽電子を用いて行われてきたが¹⁾、高エネルギー陽電子は侵入深さを制御できないため、主としてバルクの微視的構造や電子状態を調べることに利用されてきた。これに対し、低速陽電子ビームは式 (1) および (2) のように入射エネルギーによって侵入深さおよびその分布を制御できることから、これらの測定法と低速陽電子ビームの組み合わせによって表面近傍の特定の深さにおける物性を調べることができる。

消滅ガンマ線ドップラー拡がり測定は、対消滅時の電子・陽電子対の運動によるわずかなガンマ線エネルギーのドップラーシフトを高分解能ガンマ線検出器によって観測する測定法である。消滅ガンマ線角相関法は、2本のガンマ線の放出角を高精度に測ることにより電子・陽電子対の運動量を求める方法である。

この2つの方法はどちらも電子・陽電子対の運動量分布を測る測定法である。通常、陽電子の消滅時には陽電子はエネルギーを失って熱化しており、この運動量分布は電子の運動量分布を反映する。金属結晶などフェルミ面を有する固体では、高分解能で測定するとフェルミ面の形状を直接的に測定することができる。また、陽電子が空孔型欠陥に捕獲された場合は、内殻電子との消滅割合が減ることから運動量分布の変化を測定することによって空孔型欠陥を調べることもできる。

角相関法はドップラー拡がり測定より高い分解能で測定することができるが、ガンマ線位置検出器を2個必要とし、それぞれを試料から離さなければならないために検出効率が悪く、高強度の低速陽電子ビームを必要とする。

これに対してドップラー広がり測定法は、試料の近くに検出器を置くことができ、角相関測定よりも簡便に測定ができる。そのため、市販のRI線源を利用した低速陽電子ビームでも測定が可能で広く用いられている。

この測定では、ドップラー広がり形状パラメータを入射エネルギーを変えて細かく測定することによって、欠陥濃度、深さ分布などを見積もることができる。この方法は、陽電子の侵入深さ分布、拡散、欠陥への捕獲などを仮定し、フィッティングの手法で欠陥濃度や深さ分布のパラメータを決定する¹⁹⁾。また、近年、ガンマ線検出器2台によるコインシデンス測定によってバックグラウンド成分を減らし、高運動量域の分布の形状から陽電子消滅位置の元素の同定をする方法も開発された²⁰⁾。この方法は、化合物半導体の欠陥の同定や、不純物・空孔複合欠陥の評価に有効な測定法として注目される。

陽電子の寿命も空孔型欠陥の大きさや電子状態に対して敏感に変化することから、陽電子寿命測定も薄膜や表面近傍の物性評価法として重要である。この測定法は、寿命スペクトルの成分解析を行うことによって空孔型欠陥のサイズや濃度について定量的の高いデータを我々に与える。

Psを形成せずに消滅する場合、固体中での陽電子の寿命は100 ps～500 psの範囲である。この場合の陽電子寿命は、単原子空孔や複原子空孔など小さな欠陥では空孔サイズに対して単調に増加するが、原子が数個以上欠損した空隙では空孔サイズに対して飽和する。一方、Psを形成する場合、パラPsの寿命は真空中の寿命(125 ps)からあまり変化しないが、オルソPsの寿命は数百ピコ秒から数十ナノ秒の範囲で変化する。この寿命は、2節に述べたように空隙のサイズや空隙表面の電子状態を反映する。

陽電子寿命測定は、陽電子の固体への入射時刻と消滅時刻の時間差を測定する。消滅時刻は、消滅ガンマ線の検出器のタイミング信号から得る。入射時刻は、従来の高エネルギーの陽電子を用いた陽電子寿命測定では β^+ 崩壊と同時に放出されるガンマ線を検出して測定していたが、低速陽電子ビームではこの手法は使えない。そこで、低速陽電子ビームを用いた陽電子寿命測定では、陽電子短パルス化装置によって100 ps程度以下のパルス幅の陽電子ビームを生成しパルス化装置から入射時刻のタイミング信号を得る手法²¹⁾が一般的に用いられる。

Fig. 2はポラスシリコン薄膜に陽電子を2 keV(平均侵入深さ約100 nm)で入射した時の陽電子寿命スペクトルで、試料の温度が500℃の場合とその後200℃に下げて測定した場合の結果である。図の寿命スペクトルにはポラスシリコンの細孔表面で形成されたPsの

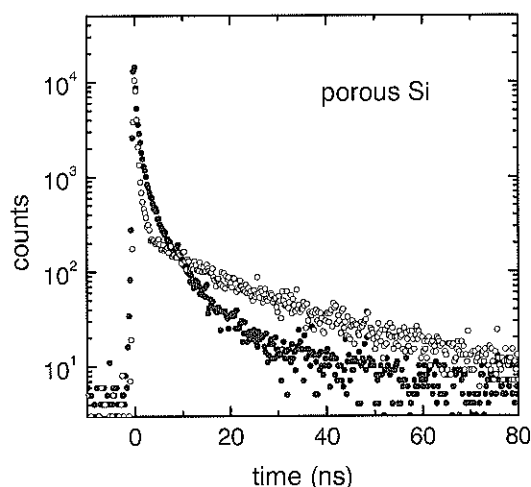


Fig. 2 Positron lifetime spectra of porous Si: (●) at 500℃ and (○) at 200℃ after 500℃ annealing. The incident positron energy is 2 keV.

長寿命成分が観測される。この200℃における長寿命成分の寿命は14 nsで、オルソPsのピックオフ消滅の寿命と空隙サイズの関係⁴⁾から1.5 nm以上のサイズの細孔が試料中に存在することを示している。

Fig. 2の実験では試料温度が500℃における測定の後200℃に下げて測定を行っているが、この温度の下降の過程では大きな構造的変化はない。それにもかかわらず陽電子寿命は大きく異なっている。これは細孔表面の電子状態が異なるためと考えられる。500℃では、細孔表面にダングリングボンドが高密度存在し、Psと空孔表面の電子の間でスピン交換反応が高速に起こるためにPsの寿命が200℃に比べて短くなったものと推定される²²⁾。

このパルス陽電子ビームによる寿命測定法の特徴は、陽電子のビーム強度が高ければ、非常に高計数率の測定が可能であるという点である。現在 6×10^4 cps以上の測定が実現しており²³⁾、1スペクトル十数秒以下の測定も可能である。この高計数率を利用して、陽電子マイクロビームによる走査型陽電子寿命顕微鏡を作る試みもなされている²⁴⁾。

5.3 表面での陽電子消滅や再放出など陽電子特有の現象を利用するもの

陽電子を低いエネルギーで打ち込むと一部は表面に戻ってきて表面の鏡像ポテンシャルに捕獲され、最表面を構成する原子の電子と対消滅する。この時、電子やイオンなどの二次粒子を放出する場合があります、この二次粒子からほとんど最表面だけの情報を得ることができる。この性質を利用した測定法としては、陽電子消滅励起オー

ジェ電子分光²⁵⁾や、陽電子消滅励起イオン脱離²⁶⁾などが提案され実験が行われている。

陽電子消滅励起 オージェ電子分光 (Positron-annihilation-induced Auger Electron Spectroscopy, PAES) は、表面で陽電子が表面の原子の内殻電子と対消滅した時に放出されるオージェ電子を測定する方法である。この方法は、陽電子が表面の鏡像ポテンシャルに捕獲されて最表面の電子と対消滅する現象を利用することから、電子ビームなどによるオージェ電子分光に比べて表面に敏感である。

また、電子ビームなどによるオージェ電子分光では内殻電子を励起するためにエネルギーの高い粒子を表面に入射しなければならないが、陽電子の場合は内殻電子の励起は電子との対消滅現象を利用することから、入射陽電子のエネルギーは低くとも構わない。その場合、入射陽電子より高いエネルギーで放出される電子は、オージェ過程に起因した二次電子のみである。つまり、入射陽電子より高いエネルギー領域では、電子ビーム励起オージェ電子分光法で見られる非弾性散乱電子によるバックグラウンドやオージェ過程以外のプロセスで放出される二次電子によるバックグラウンドのないオージェ電子スペクトルを得ることができる。また、入射エネルギーが低く、入射陽電子数に対するオージェ電子の放出割合が電子よりも高いことから、試料に与えるダメージが少ないという特徴もある。

陽電子を用いたオージェ電子分光法では、電子ビームの場合と同様にCMA (cylindrical mirror analyzer) 型の電子エネルギー分析器を用いる場合もあるが、エネルギー選別型の分析器であるため測定効率は良くない。そこで、磁場勾配法によって放出電子を平行化して測定効率を上げる場合が多い。磁場勾配法を用いる場合、E×B偏向板と位置検出器によるエネルギー分析器^{27, 28)}あるいはパルス陽電子ビームによる飛行時間型エネルギー分析器^{29, 30)}によってエネルギー分析を行う。筆者らの研究室では飛行時間型エネルギー分析器の開発を行っているが、最近分解能が向上し、この方法によってオージェピークの化学シフトを調べることが可能になった³¹⁾。この測定法については別稿にて詳しく紹介している³²⁾。

陽電子の表面からの再放出という現象も電子には無いユニークな特徴である。この再放出割合の入射エネルギー依存性は表面の仕事関数が負の場合、陽電子の表面付近での実効的な拡散距離を反映する。拡散距離は陽電子を捕獲する欠陥が少なくなるほど長くなることから、結晶の評価に用いることができる。また、再放出される陽電子のエネルギー分布は表面の状態によって敏感に変化する。このエネルギー分布は短パルス陽電子ビームを用

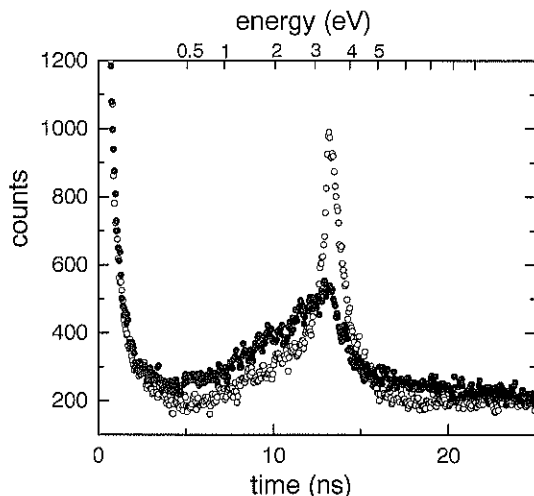


Fig. 3 Time-of-flight spectrum of re-emitted positrons from a polycrystalline tungsten surface: (○) clean surface and (●) oxidized surface at 1000°C for 20 s at the oxygen partial pressure of 1×10^{-3} Pa.

いた飛行時間法によって容易に測定できる。Fig. 3は、電界反射型飛行時間法¹⁰⁾によって測定したタングステン多結晶清浄表面と表面がわずかに酸化した表面の再放出陽電子の飛行時間 (放出エネルギー) 分布であり、表面の酸素によって再放出ピークの形状が大きく変化することを示している。

この測定は、陽電子寿命測定ほどの時間分解能を必要とせず、ドップラー広がり測定ほどの計数も必要としないことから市販のRI線源を用いたコンパクトな陽電子ビームラインでも短時間測定が可能である。この測定は陽電子に対する仕事関数が負で陽電子の再放出割合が高い材料に限られるという制限がある。しかし、次世代の半導体材料として期待されるダイヤモンド、SiC、GaN¹⁰⁾などのワイドバンドギャップ半導体はこの条件に適合することから、これらの材料の表面近傍の結晶評価法として有望である。

5.4 表面Psを利用する測定法

前述のように、電子と陽電子の束縛状態であるPsは、空隙や表面など電子密度が低い場所でないとは形成されない。一般の金属や半導体の完全結晶では、結晶内部は電子密度が高くPsは実質的に存在しない。これに対して、表面では電子密度が低くなっているため、表面第一原子層の電子と陽電子がPsを形成し、真空中に飛び出す場合がある。この表面から飛び出すPsを検出することによって物質最表面の状態を知ることができる。

エネルギーの揃った陽電子を入射すると、その表面から飛び出してくるPsのエネルギー、放出角は結晶表面

の電子状態を反映したものになる。これは、角度分解光電子分光法と同様に考えることができ(光電子分光の光は陽電子に、放出電子はPsにそれぞれ対応)、表面の電子のバンド構造の解析ができる³³⁾。しかも、角度分解Ps分光は表面第一原子層のみのバンド構造を調べることができる。

さらに、表面に吸着した原子の結合軌道の電子を取るPs形成では、陽電子の吸着子と下地表面の間での散乱がPs形成に影響を及ぼすと予測されている。入射する陽電子のエネルギーを変えて、吸着原子によるPs形成断面積を測定していけば、吸着子の吸着位置を確定することができる³⁴⁾。これは、EXAFSと同様な情報を我々に与えてくれるが、EXAFSと異なって水素などの軽元素にも適用できるという特徴がある。

また、低速陽電子を時間的にも空間的にも高密度で固体に入射した場合、表面でPs分子を形成する場合があります、その形成の収率を測定することによって、表面の化学的な状態を測定する方法も提案されている³⁵⁾。

これらの方法は、強度および輝度の高い陽電子ビームとともに高度なPsの計測系も必要であることから、まだ本格的な実験は行われていないが、今後、質の高い陽電子ビームと計測系が揃えば、これらの測定が実現できるであろう。

6. ま と め

以上のように、低速陽電子ビームの発生・制御技術の進歩によって低速陽電子ビームを用いたさまざまな固体の表面および表面近傍の測定が可能になってきている。それぞれの測定法は、どれも陽電子のユニークな性質を用いており、表面についての新しい知見を我々に与えてくれる。

これまで述べてきた低速陽電子を用いた測定法の中で、入射エネルギー可変消滅ガンマ線ドップラー広がり測定、パルス陽電子による寿命測定、陽電子消滅励起オージェ電子分光はすでに多くの試料について実験がなされ、それらの測定法が、表面および表面近傍の物性を調べるのに非常に有用であることが明らかにされてきている。その他の測定法も、理論の検証などの実験がなされてきつつある。

今後、低速陽電子ビームの強度および質が向上すれば、ここに述べた測定がさらに容易になるだけでなく、陽電子ビームのマイクロビーム化による微小な試料の測定や試料を2次元あるいは3次元(入射位置+入射エネルギー)で走査する顕微鏡なども実現できると期待される。

文 献

- 1) アイソトープ協会編: “陽電子計測の科学” (アイソトープ協会, 1993).
- 2) P. Asoka-Kumar, K.G. Lynn and D.O. Welch: *J. Appl. Phys.* **76**, 4935 (1994).
- 3) S. Valkealahti and R.M. Nieminen: *Appl. Phys. A* **32**, 95 (1983).
- 4) 伊藤賢志, 中西 寛, 氏平裕輔: ラジオアイソトープ (Radioisotopes) **47**, 206 (1998).
- 5) Y. Itoh, K.H. Lee, T. Nakajyo, A. Goto, N. Nakanishi, M. Kase, I. Kanazawa, Y. Yamamoto, N. Oshima and Y. Ito: *Appl. Surf. Sci.* **85**, 165 (1995).
- 6) M. Weber, K.G. Lynn, L.O. Roellig and A.R. Moodenbaugh: “Intense Positron Beams”, ed by E.H. Ottewitte and W. Kells (World Scientific, Singapore, 1988) p. 11.
- 7) 理研シンポジウム “スピン偏極低速陽電子ビームの基礎と応用” 講演要旨集 (理研, 1995).
- 8) R.H. Howell, R.A. Alvarez and M. Stanek: *Appl. Phys. A* **51**, 146 (1990).
- 9) M. Springer, G. Kögel, B. Strasser, W. Triftshäuser, K. Schreckenbach: *Materials Sci. Forum* **255-257**, 695 (1997).
- 10) R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Uedono, Y.K. Cho, S. Yoshida, Y. Ishida, T. Ohshima, H. Itoh, M. Chiwaki, T. Mikado, T. Yamazaki and S. Tanigawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 4636 (1998).
- 11) A.P. Mills, Jr.: “Proc. Int. School of Physics ‘Enrico Fermi’ Course LXXXIII” (North-Holland, Amsterdam, 1983) p. 432.
- 12) G.R. Brandes, K.F. Canter, T.N. Horsky, P.H. Lippell and A.P. Mills, Jr.: *Rev. Sci. Instrum.* **59**, 228 (1988).
- 13) 谷川庄一郎: まてりあ **35**, 165 (1996).
- 14) C.B. Duke, D.E. Lessor, T.N. Horsky, G.R. Brandes, K.F. Canter, P.H. Lippell, A.P. Mills, Jr., A. Paton and Y.R. Wang: *J. Vac. Sci. Technol. A* **7**, 2030 (1989).
- 15) C.B. Duke, A. Paton, A. Lazarides, D. Vasumathi and K. F. Canter: *Phys. Rev. B* **55**, 7181 (1997).
- 16) A. Ichimiya: *Solid State Phenom.* **28/29**, 143 (1992).
- 17) I. Kanazawa, Y. Ito, M. Hirose, H. Abe, O. Sueoka, S. Takamura, A. Ichimiya, Y. Murata, F. Komori, K. Fukutani, S. Okada and T. Hattori: *Appl. Surf. Sci.* **85**, 124 (1995).
- 18) A. Kawasuso and S. Okada: *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2695 (1998).
- 19) 上殿明良, 谷川庄一郎: まてりあ **35**, 140 (1996).
- 20) P. Asoka-Kumar, M. Alatalo, V.J. Ghosh, A.C. Kruseman, B. Nielsen and K.G. Lynn: *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2097 (1996).
- 21) 鈴木良一: まてりあ **35**, 147 (1996).
- 22) R. Suzuki, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki and Y. Kobayashi: *Phys. Rev. B* **49**, 17484 (1994).
- 23) R. Suzuki, T. Mikado, M. Chiwaki, H. Ohgaki and T.

- Yamazaki: Appl. Surf. Sci. **85**, 87 (1995).
- 24) A. Zecca, R.S. Brusa, M.P. Duarte-Naia, G.P. Karwasz, J. Paridaens, A. Piazza, G. Kögel, P. Sperr, D.T. Britton, K. Uhlmann, P. Willutzki and W. Triftshäuser: Europhys. Lett. **29**, 617 (1995).
- 25) A. Weiss, R. Mayer, M. Jibaly, C. Lei, D. Mehl and K.G. Lynn: Phys. Rev. Lett. **61**, 2245 (1988).
- 26) I. Kanazawa, T. Koizumi, A. Iwamoto, M. Tashiro, F. Komori, Y. Murata, K. Fukutani and Y. Ito: Materials Sci. Forum **255-257**, 787 (1997).
- 27) C. Lei, D. Mehl, A.R. Koymen, F. Gotwald, M. Jibaly and A. Weiss: Rev. Sci. Instrum. **60**, 3656 (1989).
- 28) E. Soininen, A. Schwab and K.G. Lynn: Phys. Rev. B **43**, 10051 (1991).
- 29) R. Suzuki, T. Ohdaira, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki and T. Yamazaki: Appl. Surf. Sci. **100/101**, 297 (1996).
- 30) T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado and T. Yamazaki: Materials Sci. Forum **255-257**, 769 (1997).
- 31) T. Ohdaira, R. Suzuki and T. Mikado: Surf. Sci. **433-435**, 239 (1999); Appl. Surf. Sci. **149**, in press.
- 32) 大平俊行, 鈴木良一: 表面科学 **20**, 563 (1999).
- 33) A. Ishii: Surface Sci. **209**, 1 (1989).
- 34) A. Ishii: AIP Conference Proc. **303**, 227 (1994).
- 35) H. Ikegami: Int. J. Quantum Chem. **71**, 83 (1999).