

〔研究〕

短パルス陽電子ビームによる再放出陽電子の測定

Measurement of Re-emitted Positrons by a Pulsed Positron Beam

鈴木 良一 大平 俊行 三角 智久
R. SUZUKI T. OHDAIRA T. MIKADO

Positron re-emission from surfaces is a quite important phenomenon for slow positron production. A measurement apparatus, which gives us an energy profile of re-emitted positrons from a surface, has been developed at the ETL intense slow positron facility. The apparatus uses a time-of-flight technique with a variable energy pulsed positron beam. Using the apparatus, we have investigated positron re-emission from tungsten surfaces under various conditions. A thermal treatment with oxygen was found to be effective to restoration of degraded tungsten moderators. We also discuss the possibility of positron re-emission measurement to the evaluation of wide-band-gap semiconductor materials.

§ 1 はじめに

当所では、電子リニアックを用いた高強度低速陽電子ビームの発生・制御技術の開発と、それを用いた新しい材料評価法の研究を行っている。この研究において、陽電子は、電子リニアックで発生した約 70MeV の高エネルギー電子ビームをタンタルターゲットに入射し、制動放射 X 線から電子・陽電子対生成によって発生する。ターゲットで発生した陽電子はエネルギーが高くエネルギー分布も広がっているため、このままでは物性測定に用いることはできない。そこで、真空中で熱処理したタングステン箔を用いて、高エネルギーの陽電子を数 eV 以下の低速陽電子に減速する。この陽電子の減速は、陽電子の固体表面からの再放出現象を利用する。

陽電子の再放出は物質の種類・固体内部の欠陥・表面状態などによって変化する。低速陽電子の発生では、陽電子の再放出割合が陽電子ビームの強度を直接決定することから、陽電子減速材の再放出特性を知ることが極めて重要である。これまで、タングステンなどの陽電子減速材について陽電子の再放出特性が調べられてきたが、ほとんどが室温における実験であった。し

かし、電子リニアックを用いた陽電子発生では散乱電子線によって減速材が数百度の高温になる場合があり、高温時の再放出特性も重要である。また、表面の炭素や酸素などの不純物の影響も知る必要がある。

このような種々の条件における陽電子の再放出特性を調べるために、高強度短パルス陽電子ビームを用いた飛行時間型の再放出陽電子測定装置を試作した。この装置を用いてタングステンの陽電子再放出特性を調べ、電子リニアックを用いた低速陽電子ビームの発生に最適な条件を探った。

また、陽電子の再放出現象は、再放出陽電子顕微鏡や陽電子の拡散距離の測定など物性評価にも応用できる。SiC, GaN, ダイヤモンドなどのワイドバンドギャップ半導体から高い割合で陽電子が再放出することから、これらの材料の評価への応用も期待され、この可能性についても議論する。

§ 2 飛行時間型再放出陽電子エネルギー分布測定装置

陽電子を固体に入射した場合、陽電子の再放出は以下のような過程で起こる。

KEY WORDS : 再放出陽電子, 飛行時間測定, 表面, 減速材, 不純物

1. 陽電子は物質中に入るとすぐにエネルギーを失って熱平衡エネルギー程度になる(熱化)。
2. 熱化した陽電子は固体中を拡散する。
3. 拡散によって表面にきた場合、表面の仕事関数が負であると、表面から陽電子が再放出される。

この最後の過程では、再放出陽電子以外に、表面の電子と結合してポジトロニウムとなって表面から放出されたり、表面の電子と消滅したりする場合もある。表面から再放出される陽電子の割合やエネルギー分布は、物質や表面状態によって異なる。また、エネルギーが高くなるほど、陽電子は深い位置に入射されることから、固体中で消滅する割合が増え、表面に到達する割合が低くなる。

再放出陽電子のエネルギー分布の測定は、従来減速電位法が一般的に用いられてきた¹⁾。この方法は試料と検出器との間に減速電位電極を設け、この電極の電位を変えながら再放出陽電子の収量を測定し、その電位依存性の微分を取ることによってエネルギー分布を求める方法である。この方法は電位依存曲線の微分をとらなければならないことから、それぞれの点に十分な統計が必要であり、測定に時間を要した。

当所では、入射エネルギー可変陽電子寿命測定や陽電子消滅励起オージェ電子測定のために低エネルギー陽電子短パルス化装置²⁻⁴⁾を開発しており、この短パルス陽電子ビームを用いた飛行時間測定によって再放出陽電子のエネルギー分布を測定することが可能である。そこで、入射エネルギー可変陽電子寿命測定装置の試料部を図1のように改造し、飛行時間型の再放出陽電子エネルギー分析を行うことのできる装置を開発した⁵⁾。

この装置は、試料の手前にグリッドを置いて、グリッド電極に電圧を印加し、試料とグリッド間に電界を生じさせる。この状態で、陽電子寿命用の短パルス化装置によって発生した100～200ピコ秒の幅の短パルス陽電子ビームを、試料に入射する。この時、表面から陽電子が再放出されると、試料・グリッド間の電界によって追い返され、試料に戻る。試料に戻った陽電子は大部分試料表面で消滅する。この消滅ガンマ線の時間スペクトルを測定すると、入射してすぐ消滅した陽電子によるメインピークの後ろに、再放出されて再び表面に戻ってきた陽電子からのピークが観測される。陽電子の物質中での寿命は通常500ピコ秒以下と

短いことから、メインピークを時間のゼロ点として飛行時間を測定し、ビームの軸方向のエネルギー(あるいは速度)成分を測定することができる。試料とグリッド間の距離を L 、試料・グリッド間に印加する電圧を V_{gs} 、陽電子の再放出エネルギーを E_r (eV)とすると、飛行時間 T は、以下の式のように、 E_r の1/2乗に比例する。

$$T = \frac{2L}{V_{gs}} \sqrt{\frac{2mE_r}{e}} \quad (1)$$

ここで、 m は電子の質量、 e は電子の電荷量である。

図1の飛行時間測定装置によって測定したタングステン単結晶(100)面からの再放出陽電子の飛行時間スペ

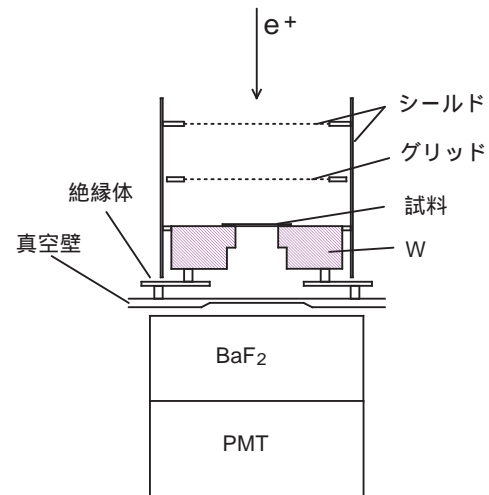


図1 飛行時間型再放出陽電子測定セットアップ。

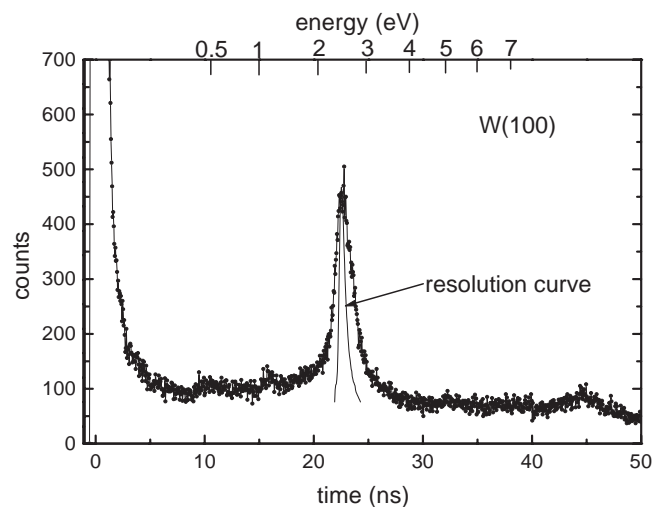


図2 タングステン単結晶(100)面からの再放出陽電子の飛行時間スペクトル。

クトルを、図2に示す。この場合の試料とグリッド間の距離は20 mm、電位差は9.5 Vである。清浄表面では再放出陽電子のピークが2.5 eV付近に現われる。

この実験装置では、試料・グリッド間電圧 V_{gs} より大きいエネルギーの再放出陽電子はグリッドの外に出て行き観測されない。そのため、40 ns (9.5 eV) 以上は観測されないはずであるが、図2では40 ns以降もバックグラウンドよりも高いピークが観測される。このピークは、22 nsの再放出ピークで表面に戻ってきた再放出陽電子が、一部再び表面から放出されて再度表面に戻って消滅したものである。

ここで陽電子の表面からの再放出の割合を数値的に表わすため、パラメータ R を以下のように定義する。

$$R = S_r / S_{tot} \quad (2)$$

上式で、 S_r は飛行時間スペクトルにおいて再放出陽電子のピークを全て積分した面積、 S_{tot} はスペクトル全体の面積である。

R パラメータは、表面からポジトロニウムが放出されない場合は、入射陽電子に対する再放出陽電子の割合に等しい。しかし、ポジトロニウムが放出される場合は、3光子消滅のガンマ線の一部は計数されなくなるので、その効果を考慮する必要がある。真空中に放出されるポジトロニウムの割合 F_{ps} は、ガンマ線のエネルギースペクトルを測定することによって求めることができる。再放出陽電子測定において、ガンマ線検出器のディスクリミネータレベルを511 keVの消滅ガンマ線のピークのみを計数するようにした場合、3光子消滅はほとんど計数されないのので、この場合の入射陽電子に対する再放出陽電子の割合 F_r は次式のように表わされる。

$$F_r = R(1 - 0.75F_{ps}) \quad (3)$$

飛行時間型の再放出陽電子測定装置は、従来の減速電位法のように微分をとる必要が無いため、高速の測定が可能である。図2の測定では、パルス間隔200 ns、試料・検出器間の距離3 cmの条件で、計数率は約1000 cpsであり、測定時間は約5分(30万カウント)でピーク形状を調べるのに十分な統計が得られる。

エネルギー分布を測定せず、単に R パラメータある

いは再放出陽電子の割合のみを測定する場合は、さらに高速の測定ができる。当所の装置ではパルス間隔を最短23 nsにすることができ、さらに試料と検出器の距離を5 mm程度(磁気遮蔽・真空窓・絶縁体)まで近づけることができる。この場合、 5×10^4 cps以上の高計数率測定が可能である。 5×10^4 のカウントでは0.5%以下の統計誤差になることから、わずか1秒で再放出パラメータの測定が可能である。

§ 3. 再放出陽電子エネルギー分布測定装置によるタングステン減速材の研究

低速陽電子発生装置では、高エネルギー陽電子の減速材として、一般に真空中で熱処理したタングステンが用いられる。タングステン減速材の特徴を挙げると以下ようになる。

1. 拡散によって表面に達した陽電子の再放出割合が20 ~ 30%。
2. 比重が大きい。侵入深さは比重に反比例することから、同じエネルギーで入射しても比重の小さい物質より浅い位置でとまり、拡散によって容易に表面に到達しやすい。
3. 真空中で熱処理した後、大気に短時間さらしても陽電子の再放出割合はあまり変わらないため、取り扱いが容易。
4. 通電加熱や電子ビーム加熱など真空中での熱処理がしやすい。

このような特徴から、当所の高強度低速陽電子ビームラインでは、1987年に完成した当初から熱処理したタングステンの減速材を用いてきた。ところが、長時間のタングステン減速材の使用によって、減速材の性能が劣化し、これまで数回減速材の交換を余儀なくされた。この減速材の劣化の原因を調べたところ、表面に堆積した炭素とリニアックの電子ビームで生じた中性子による照射損傷が原因であると推測された⁵⁾。

ある固体が高真空~超高真空雰囲気中において、これに電子ビームを照射すると、真空中のCOが解離して炭素が表面に堆積することが知られている。電子リニアックを用いた陽電子発生装置の減速材付近は 10^{-7} Pa程度の高真空であり、ターゲットへの電子ビーム入射

時の散乱電子線が減速材に照射されているため、散乱電子線によって炭素が堆積していると推測される。また、散乱電子線によってタングステンが熱せられ数百度の高温になるが、この温度では炭素がタングステン中を拡散しやすく、拡散によって表面に炭素が集まってきたという可能性もある。いずれにしても表面に炭素が堆積しつづけることによって、陽電子の再放出割合が減少したと考えられる。

中性子による照射損傷は1000°C程度の熱処理で回復することが知られているが、炭素は1400°Cでも蒸気圧が 10^{-8} Pa以下⁶⁾と非常に小さく、真空中で1000°C程度の熱処理で除去するのは難しい。しかし、少量の酸素ガスを導入して熱処理すれば、炭素は除去できると考えられる。さらに、減速材の使用中に真空中に少量の酸素ガスを導入することで炭素の堆積を防ぐことができると考えられる。この場合、酸素がタングステン表面に来ることから、陽電子再放出の酸素による影響について調べる必要がある。また、入射する高エネルギー電子ビームの量が多いと、散乱電子線によってタングステンが熱せられ、数百度以上の高温になることから、高温における陽電子の再放出の様子を知る必要もある。このようなことから、種々の条件におけるタングステン表面からの再放出陽電子を、飛行時間型再放出陽電子分光装置によって調べた。

表1に市販の厚さ6 μ mの多結晶タングステン箔をStep 1からStep 12まで熱処理温度(Step 9と12は測定

温度)及び酸素分圧を変えながら測定したRパラメータ、表面から放出されるポジトロニウムの割合 F_{Ps} 、再放出陽電子の割合を示した。この多結晶タングステン箔は、純度99.95%で主な不純物は炭素である。実験前、表面の酸化物をNaOH水溶液で除去した。Step.1で2000°C 10秒のフラッシュ加熱を行うと、約20%の再放出割合となった。その後、900°C 30分という比較的低温で長時間の熱処理を行うと、再放出割合は1/4に減少した。900°Cでは、箔中の炭素不純物が拡散で表面に来て、炭素の蒸気圧が低いために炭素が表面に集積し、この炭素によって陽電子の再放出が抑制されたものと考えられる。

この膜をStep 3において再び2000°C 10秒のフラッシュ加熱を行っても、Step 1の半分の10%程度にしか回復しない。これは、2000°Cの炭素の蒸気圧が 10^{-3} Pa程度で、10秒程度の短時間の加熱ではまだ表面に炭素が一部残っているためと考えられる。

Step 4において、Step 2と同じ900°Cの熱処理であるが 1×10^{-3} Paの酸素を導入すると、再放出割合は26%に増加した。これは、酸素と表面の炭素が結合し、COとなって表面から放出されるために、再放出を抑制していた炭素が除去されたためと考えられる。しかし、 1×10^2 Paと高い酸素分圧で熱処理すると厚い酸化膜が形成されて陽電子は再放出されなくなる。この酸化膜は、1000°Cのフラッシュ加熱では除去することができないが、1500°Cのフラッシュ加熱で除去することができる。

表1 入射エネルギー3keVにおける熱処理後の多結晶タングステン薄膜からの陽電子再放出特性。

Step No.	処理	測定温度()	R	F_{Ps}	再放出割合(%)
1	2000 10秒	25	0.26	0.33	20
2	900 30分	25	0.06	0.13	5
3	2000 10秒	25	0.13	0.25	10
4	O ₂ 1×10^{-3} Pa & 900 2分	25	0.32	0.27	26
5	O ₂ 1×10^2 Pa & 700 20分	25	0.02	0.03	2
6	1000 20分	25	0.03	0.04	3
7	1500 10分	25	0.29	0.36	22
8	2000 10分	25	0.28	0.35	22
9	O ₂ 5×10^{-5} Pa	900	0.42	0.28	34
10	O ₂ 5×10^{-5} Pa 900 30分	25	0.34	0.13	31
11	2000 2秒	25	0.3	0.33	24
12	O ₂ 無し	700	0.27	0.63	17

ここまでの結果から、タングステンの表面では、

1. 表面の炭素が陽電子の再放出を抑制する。
2. 表面の炭素を真空中で除去するには2000 の短時間加熱では不十分。
3. 微量の酸素ガスを導入すると900 程度でも炭素を除去することができる。
4. 酸化膜は 1500 の短時間加熱で除去できる。

ということが言える。

また、表1のStep 9～12では、高温における表面の酸素の影響を調べた。Step 9では、酸素が 5×10^{-5} Pa 導入した状態での900°Cにおける再放出率であるが、これがこの実験で最も高い値となった。一方、Step 12のように酸素のない雰囲気では、700°C程度的高温でもポジトロニウムの割合が多くなって再放出割合が低い。また、室温で測定した場合でも酸素雰囲気では熱処理後は酸素が無い状態で熱処理した場合に比べてポジトロニウムの割合が若干低い。このことは、表面の酸素が(特に高温において)ポジトロニウムの形成を抑制していることを示唆している。

図3はタングステン単結晶(100)面から放出される再放出陽電子のエネルギー分布で、試料を真空中あるいは酸素 1×10^{-3} Pa の雰囲気下で2000°C 30秒の熱処理後、10°C/秒の速度で室温まで下げて測定したものである。

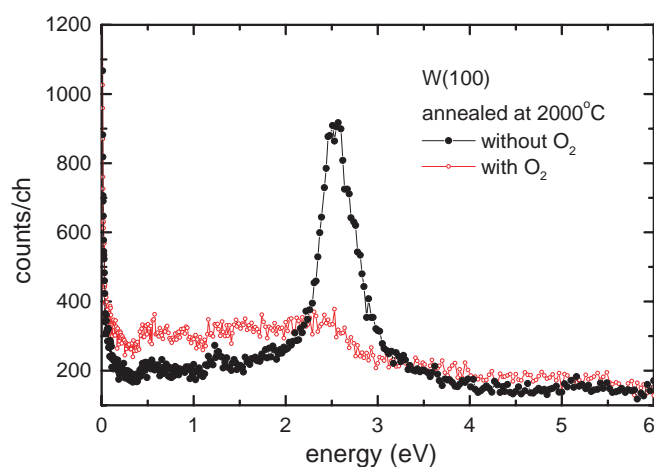


図3 タングステン単結晶(100)面から放出される再放出陽電子のエネルギー分布。試料を真空中あるいは酸素 1×10^{-3} Pa の雰囲気下で2000°C 30秒の熱処理後10°C/秒の速度で室温まで下げた後測定。

酸素なしで熱処理した表面からの再放出陽電子は鋭いピークを持っているが、酸素雰囲気では熱処理した場合はエネルギーの低いほうにピークが広がっている。このことは、陽電子ビームの高輝度化(再放出陽電子を加速・収束して細いビームにし、再び減速材に入射してビームの輝度を上げる方法)には、ピークのエネルギー幅の狭い酸素のない表面が適しているということが言える。

しかし、電子リニアックを用いた高強度低速陽電子ビームの発生では、初段の減速材は、それほどの単色性を必要としない。この減速材は前述のように散乱電子によって温度が数百度になる可能性がある。しかし、表1に示したように酸素の無い表面は、温度が高くなるとポジトロニウムの形成が多くなって再放出割合が減少するという問題がある。したがって、電子リニアックを用いた陽電子発生装置では、減速部にわずかな酸素を導入するほうが良いと結論できる。

§ 4. 再放出陽電子測定装置の応用

陽電子の表面からの放出は、前述のように表面の不純物によって、再放出割合が変化したりエネルギー分布が変化したりする。また、固体の表面近傍の欠陥も再放出陽電子の割合を減少させる。この性質を利用した材料評価法として、再放出陽電子顕微鏡が考案⁷⁾され、開発が行われている。これは、再放出した陽電子をレンズによって拡大し、2次元の画像として得るもので、試料の表面状態や表面近傍の欠陥の分布を画像として得ることができる。現在、80 nmの分解能が実現している⁸⁾。

また、飛行時間型再放出陽電子測定装置を利用して、表面近傍の欠陥の評価を行うことも可能である。筆者らは、タングステンなどの金属以外に、ワイドバンドギャップ半導体であるSiCやGaNからも陽電子が高い割合で再放出されていることを発見した⁵⁾。また、ダイヤモンドからも再放出が観測されている。これらのワイドバンドギャップ半導体は、次世代の半導体として期待されているが、格子欠陥がシリコン系の半導体に比べて多く、期待される性能がまだ実現していないなどの課題がある。図1の装置を使えば、これらの半導体の表面近傍の欠陥評価を行うことができる。

この欠陥の評価は、Rパラメータの入射エネルギー

依存性 $R(E)$ を測定することにより行う。前述のように、 R パラメータは1ポイント1秒程度で測定可能で、入射エネルギー依存性を知るためには数ポイント測定すればよいことから、数秒の短時間で評価を行うことが可能である。

今、試料中に欠陥が一様に分布しているとして、陽電子の拡散距離を L_+ とすると、拡散距離と R パラメータのエネルギー依存性には以下の関係がある。

$$R(E) = \int_0^{\infty} \exp(-z/L_+) P(z, E) dz \quad (4)$$

ここで、 $P(z, E)$ は、エネルギー E における陽電子の侵入深さ分布であり、本特集の別稿に述べたような分布になっている。この式からフィッティングによって L_+ を求める。

この陽電子の拡散距離 L_+ と欠陥濃度 C_d は以下の関係がある。

$$L_+ = \sqrt{\frac{D_+}{\lambda_b + \mu C_d}} \quad (5)$$

ここで、 D_+ は拡散定数、 λ_b は完全結晶中の陽電子の消滅速度(陽電子寿命の逆数)、 μ は欠陥単位濃度あたりの捕獲速度である。これによって、欠陥濃度 C_d を見積もることができる。 D_+ や μ は一部の物質については概算値が知られているが、GaN などについてはまだ値が確定していないものもある。今後、この測定や陽電子寿命測定などのデータを蓄積してこれらの値を確定する必要がある。

§ 5. おわりに

飛行時間法による再放出陽電子のエネルギー分布の測定は、従来の再放出測定に比べて簡便で高速の測定が可能であることから、様々な条件下における陽電子の再放出を調べることができる。この性質を利用して、タングステンの再放出の温度と酸素ガスの影響について調べた。

その結果、真空中で微量の酸素ガスを導入しタングステンの温度を数百度まで上げることによって、減速効率の劣化の原因である表面の炭素を除去することが

でき、陽電子の再放出割合が回復することが明らかになった。また、高エネルギー電子ビームの散乱電子によって減速材の温度が数百度になる状態では、表面に微量の酸素があるとポジトロニウムの形成を抑制し、表面に酸素がない場合に比べて再放出割合が多くなる。タングステン表面の酸素は、再放出陽電子のエネルギー分布の幅を広げてしまうため、高輝度陽電子ビームの発生には適していないが、電子リニアックを用いた低速陽電子発生装置の初段の減速材としては問題がない。そこで、現在、減速材の温度と酸素ガス圧をコントロールして減速材を最適な条件で動作させる陽電子減速装置を開発中である。

また、この飛行時間型再放出陽電子測定法は、再放出パラメータのエネルギー依存性を測定することによって、陽電子を再放出する金属や SiC, GaN, ダイヤモンドなどのワイドバンドギャップ半導体の材料評価にも有望である。将来、ビーム径を細く絞ることができるようになれば、走査型の陽電子再放出顕微鏡も可能になると考えられ、さらに応用が広がるものと期待される。

参 考 文 献

- 1) A.P. Mills, Jr. : Proc. Int. School of Physic ' Enrico Fermi ' Course LXXXIII, North-Holland, Amsterdam (1983), 432.
- 2) 鈴木良一：日本金属学会誌「まてりあ」特集：第35巻第2号(1996)91.
- 3) 鈴木良一：電子技術総合研究所研究報告 第928号(1991)
- 4) 鈴木, 大平, 三角, 大垣, 千脇, 山崎, 小林：電子技術総合研究所彙報 59 (1995) 245.
- 5) 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 (1998) 4636.
- 6) 小間篤, 八木克道, 塚田捷, 青野正和 編：表面物性工学ハンドブック (丸善, 1987) p.524.
- 7) L.D. Hulett, Jr., J.M. Dale, S. Pendyala : Materials Sci. Forum 2 (1984) 133.
- 8) G.R. Brandes, K.F. Canter, A.P. Mills Jr. : Phys. Rev. B 43 (1991) 10103.

(1999.11.26 受付)