

〔研究〕

飛行時間分析型陽電子消滅励起オージェ電子分光装置の開発

Development of an Apparatus for Time-of-Flight Positron-Annihilation Induced Auger Electron Spectroscopy

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

We have constructed an apparatus for time-of-flight positron-annihilation induced Auger electron spectroscopy (TOF-PAES) at an intense slow positron beam-line of the Electrotechnical Laboratory. The use of the TOF method with a retarding flight tube and a magnetic parallelisation technique enables higher count-rate and energy-resolution than previous apparatus, and extends the use of PAES to Auger line-shape analysis and real-time observations for surface chemical reactions. The present paper describes the details of the TOF-PAES apparatus, and shows the results obtained with it.

§ 1 はじめに

陽電子消滅励起オージェ電子分光法 (PAES: Positron-Annihilation Induced Auger Electron Spectroscopy)¹⁾ は、 ~ 10 eV 程度の低エネルギー陽電子ビームを用い、表面の鏡像ポテンシャルにトラップされた陽電子と内殻電子とを対消滅させることによって、表面原子の内殻準位をイオン化する。この全く新しい原理に基づくオージェ電子分光法は、従来の電子励起による AES (EAES: Electron Induced Auger Electron Spectroscopy) にはない、以下のような特徴を有する。

- 1) 表面感度が極めて高く、最表面層だけに限ったオージェ分析を行うことができる。
- 2) オージェスペクトルに二次電子のバックグラウンドがない。
- 3) ビーム照射損傷を極めて低く抑えることができる。

PAES は、テキサス大アーリントン校の Weiss らによって考案され、1987年に初めての実証実験¹⁾が行われた。その後、ブルックヘブン国立研²⁾、電総研^{3,4)}でも装置開発が行われてきた。PAES 実験の難点は、一般の研究室レベルで得られる陽電子ビームの強度が

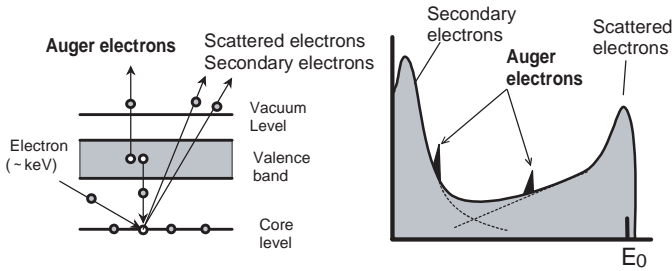
$\sim 10^5$ 個/秒 ($\sim 10^{-14}$ A) と、電子ビーム ($\sim 10^{-6}$ A) 等に比べて桁違いに弱いことである。このため、これまで開発された PAES 装置では、計数率が非常に低く、検出可能な元素は一部の励起確率の大きなものに限られていた。当所では、飛行時間 (TOF: Time of Flight) 分析型 PAES 装置^{3,4)}の開発を行ってきた。TOF 法の利点は、従来のエネルギー走査方式の装置に比べて非常に測定効率が高いことである。さらに、電子リニアックを用いて発生した高強度 ($10^7 \sim 10^8$ 個/秒) の陽電子ビームを用いることにより、ほぼ全ての元素について従来よりも計数率、エネルギー分解能の高い測定が可能となり、実用的な表面分析法として利用できるようになってきた。本稿では、PAES の原理と特徴を述べた後、当所で開発した TOF-PAES 装置の詳細およびその応用例を紹介する。

§ 2 PAESの原理と特徴

Fig.1 は、EAES と PAES のオージェ電子発生を説明したものである。EAES では、数 keV 程度の高エネルギー電子ビームによって内殻電子をたたき出すことにより内殻準位をイオン化し、オージェ過程

KEY WORDS: 陽電子, オージェ電子分光, 表面分析

(a) Electron induced AES (EAES)



(b) Positron-annihilation induced AES (PAES)

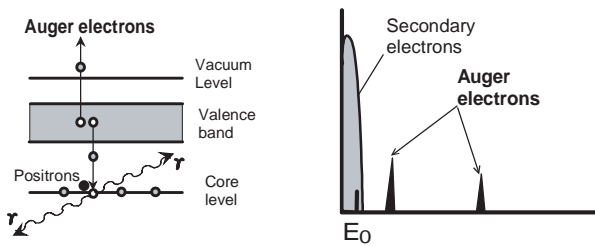


Fig.1 Comparison of the core-hole creation mechanism and the obtained Auger spectra in a) EAES and b) PAES.

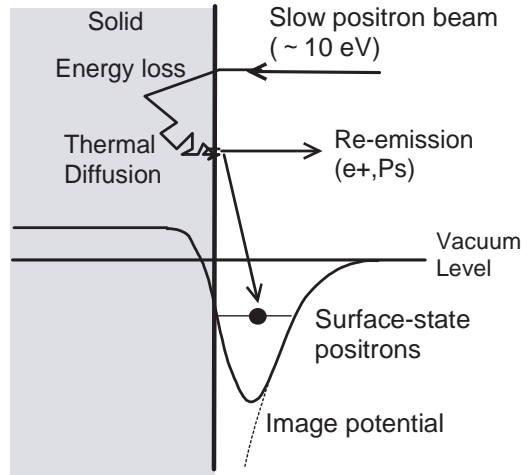


Fig.2 Schematic illustration of positron interaction with a solid surface.

を引き起こす。これに対して、PAESでは、内殻電子を陽電子と対消滅させることによって内殻空孔を形成し、オージェ過程を引き起こす。EAESとPAESでは表面感度に大きな違いがある。EAESの表面感度は固体内からのオージェ電子の脱出深さで決まり、ほぼ10原子層程度である。これに対して、PAESは最表面層だけに極めて高い感度を示す。これは以下の理由による。PAESは、原理的に内殻空孔の形成に入射ビームの運動エネルギーを必要としないので、用いる陽電子ビームのエネルギーは試料まで輸送できればいくら低くてもよい。実際の実験では、数10 eV程度の低速陽電子ビームが用いられる。陽電子は固体内に入射するとすぐに熱エネルギー程度まで減速され、その後、格子間を熱拡散する。打ち込みエネルギーが数10 eV程度の場合、熱化するまでに侵入する深さ (~nm) よりも、その後の拡散による移動距離 (~μm) の方がはるかに長いために、ほとんどの陽電子は拡散で表面に戻ることができる。陽電子が表面から出ようとする時、Fig.2のように表面外側に鏡像ポテンシャルが形成され、多くの陽電子がこのポテンシャル井戸にトラップされる(表面状態陽電子)。正の電荷を持つ陽電子は原子の内部には

近づけず、大部分は表面の価電子と対消滅するが、数%程度は波動関数の滲み出しによって表面原子の内殻電子と対消滅する⁵⁾。表面状態陽電子の波動関数の滲み出しは、ほぼ最表面層だけに限られるので、陽電子消滅による内殻空孔は最表面原子のみに形成され、オージェ電子は最表面原子だけから発生する。このような原理により、PAESは表面最表面層だけに極めて高い感度を有する。

EAESとPAESで得られるオージェスペクトルの模式図をFig.1右側に示す。EAESでは、電子ビームのエネルギーは励起する内殻準位の数倍以上が必要であり、このため、オージェ信号は電子ビームによって生成される非常に大きなバックグラウンド(散乱電子、二次電子)の上になぜか顔を出した状態で検出される。バックグラウンドの中に埋もれた微小なオージェ信号を強調するために、通常、微分法による信号検出が行われる。これに対して、PAESでは、陽電子ビームのエネルギーをオージェ電子のエネルギーよりも低くすることができるので、二次電子によるバックグラウンドの全くないオージェスペクトルを得ることができる。通常のPAES実験では20~50 eV程度の陽電子ビームを用いるので、これ以上のエネルギー領域に現れるオージェ信号にはバックグラウンドが全くない。これは、オージェピーク形状を詳しく調べる研究には特に有効であると期待される。

さらに、PAESは極めて少ないビーム照射量でオー

ジェスペクトルを得ることができ、EAES でしばしば問題になるビーム照射損傷を、実質的に無視できるレベルまで減らすことができるという利点もある。これは、PAES では、1) 入射ビームのエネルギーが低いこと、2) 陽電子 1 個あたり数% の確率でオージェ電子が発生⁵⁾し、電子に比べて内殻励起の効率が低いこと、3) オージェスペクトルに二次電子のバックグラウンドがなく、S/N 比が極めて高いこと、などによる。Weiss らの実験⁶⁾によれば、同じ分析装置を用いて同質の Cu M₂₃VV オージェピーク形状を得るのに、PAES は EAES の $\sim 10^{-5}$ 以下のビーム照射量で済むということである。Weiss らの測定はエネルギーを細かく走査する方法で分析が行われたが、最近当所で開発したパルスビームを用いる飛行時間分析型の装置⁴⁾では、さらに $\sim 10^3$ 倍ほど測定の効率が良く、EAES 等でビーム損傷が問題となる弱い吸着種でも、実質的に非破壊分析が可能である。

§ 3 TOF-PAES装置の開発

PAES では、利用できる陽電子ビーム強度が電子に比べて桁違いに弱いので、実用的な計数率を得るためには効率の良い測定法を採用する必要がある。TOF 法では、パルス陽電子ビームで励起したオージェ電子のエネルギーを、電子が試料から検出器に達するまでの飛行時間測定により測定する。この方法の利点は、測定中、全エネルギー領域のオージェ電子を同時に検出できることであり、EAES で用いられる円筒鏡型分析器 (CMA: Cylindrical Mirror Analyzer) のようにエネルギーを細かく区切って走査していく方法に比べ、測定の効率が桁違いに良い。以下、当所で開発した TOF-PAES 装置および陽電子ビームラインの詳細について説明する。

3.1 低速陽電子ビームライン

陽電子の発生には、電子リニアックから得られるエネルギー ~ 70 MeV のパルス状の電子ビームを用いている⁷⁾。これを水冷した Ta コンバーターに入射し、ここで制動放射 X 線、線からの電子・陽電子対生成により高エネルギー (keV \sim MeV) の白色陽電子を発生する。これをタングステン薄膜のモデレーターに入射し、薄膜内で熱化して表面から再放出してき

たものを電場で引き出すことにより、エネルギー 5 eV の単色陽電子ビームを形成している。陽電子ビームはヘルムホルツコイルを用いた磁場輸送により、約 20 m 離れた TOF-PAES 装置まで導く。

電子リニアックはパルス幅 0.5 μ s、繰り返し 100 pulses/s で運転されているので、陽電子もこれに同期して発生する。しかし、このパルスビームはパルス幅、パルス間隔ともに広すぎて、TOF 測定には適さない。このため、ビームラインには途中にペニングトラップ方式の陽電子蓄積部が設けてあり、蓄積した陽電子を電子リニアックの次のパルスまでの間に少しずつ引き出すことにより、直流的なビームを形成している⁸⁾。ただし、この方法ではモデレーターで完全に熱化されなかった高エネルギーの陽電子やモデレーター周辺で発生した二次電子は蓄積されず、そのまま素通りしてしまう。これらが分析チェンバーに入ると二次電子を大量に発生して、検出器の効率低下やバックグラウンド上昇の原因となる。また、試料表面上の弱い吸着種の解離、脱離等が起こる可能性もある。そのため、電子リニアックのパルスと同期させたパルス偏向磁場をビームライン途中に印加して、これらの高エネルギー粒子を完全に除去している。

3.2 TOF-PAES装置

Fig.3 に TOF-PAES 装置⁴⁾の概略図を示す。装置全体にはヘルムホルツコイルによりビーム軸方向に 40 G の一様な磁場がかけられている。これは、低速陽電子ビームを試料まで導くと同時に、試料表面から放出されたオージェ電子を検出器まで導く役割をする。この装置では、チョッパー、バンチャーを用いて形成した短パルスビームを試料に入射し、試料表面から放出されたオージェ電子のエネルギーを、試料からマイクロチャンネルプレート (MCP) 検出器までの飛行時間を測定することによって分析する。各部の詳細は以下のようになっている。

チョッパーは、3 枚の金メッキ・タングステンメッシュ電極 (線径 0.03mm, 100mesh) が 2 mm 間隔でビーム軸と垂直に並んだ構造になっている。第 1 電極は接地、第 3 電極は -40 V の電位に保たれている。第 2 電極には +11V のバイアス電圧がかけられているが、これに負の矩形波パルスを印加することにより、

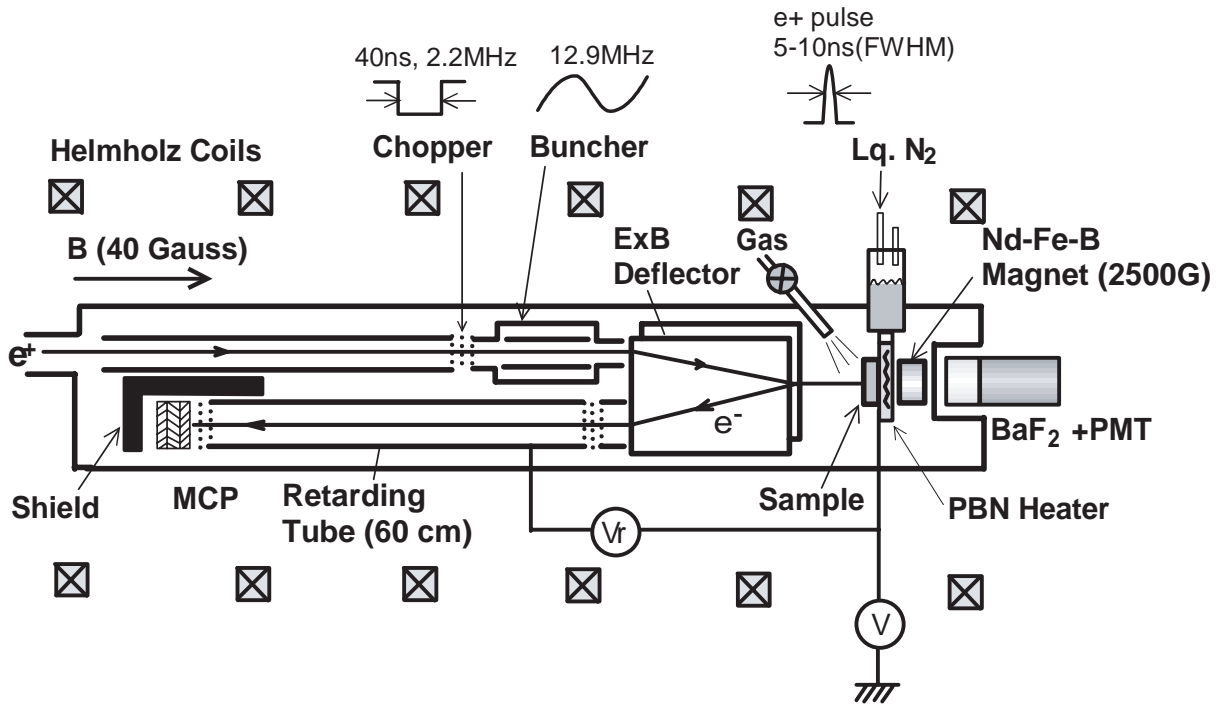


Fig.3 Schematic of TOF-PAES apparatus.

ビームをパルス状に切り出す。形成されるパルスビームのパルス幅は 40ns，パルス間隔は 460ns である。第 2 電極には，矩形波パルス信号の反射を抑えるために，高周波用の 50 セラミック抵抗（日本高周波社製）とガラス封じの 0.1 μ F チップコンデンサーを直列に接続したものを第 1 電極（接地）との間に挿入している。

チョッパーにより切り出されたパルスビームは，次にバンチャーにより圧縮される。なお，この装置では，チョッパー以降の全ての部品には -40V のバイアス電位がかけられており，陽電子ビームは 45eV に加速された状態でバンチングされ試料まで輸送される。バンチャーは 3 本の円筒電極（内径 18 mm，SUS 316 管）が同軸上に配置された構造になっており，中間電極に正弦波の変調電圧を印加する。陽電子パルスはこの電極の両端のギャップを通過する際，時間的に変化する電場により，時間的に早く通過したものは減速，遅れて通過したものは加速され，試料位置で収束される。45eV の陽電子の場合，変調周波数を 12.9MHz にすれば，15cm 離れた 2 つのギャップで同じ位相の変調を受けるようになる。現在この方法により，バンチャー出口から 40cm 離れた試料位置で，パルス半値幅 10ns に圧縮されたビームが得られ

ている。試料位置での陽電子パルスの収束は，試料背後の BaF₂ シンチレーターと光電子増倍管（浜松ホトニクス H3378）によって検出される陽電子消滅線の時間スペクトルを見ながら調整する。Fig.4 は，チョッパーのみ，およびチョッパーとバンチャーの両方を働かせた場合に得られた消滅線の時間スペクトルである。バンチャーを働かせることにより，鋭いピーク状のパルスビームが得られていることがわかる。チョッパーに印加するパルスの幅を狭くす

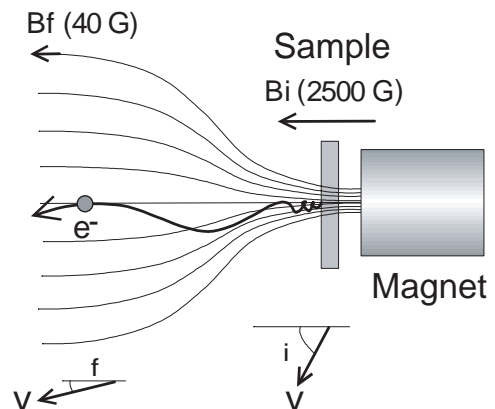


Fig.4 Mechanism of magnetic parallelisation.

れば、さらに短い幅のパルスを得ることはできるが、同時にビーム強度を落とすことになる。後述するように、パルス幅の広がりによるエネルギー分解能の劣化は、減速飛行管の使用により改善することができるので、現在はビーム強度を重視してパルス幅 10 ns の陽電子ビームを用いている。

試料の背後にはネオジウム系の強力な永久磁石（住友特殊金属社製 NEOMAX44H）が置かれており、試料位置で表面に垂直に 2500 G の磁場を発生している。磁場強度は、試料から 5cm 程度離れたところで、ヘルムホルツコイル磁場のレベル（40 G）まで減衰する。この磁場勾配は、試料表面から真空側の全 2 方位に放出される電子の向きを、ヘルムホルツコイル磁場の向きに揃える役割をする⁹⁾。Fig.5 に示したように、磁場中では電子は磁場に絡みつくように旋回運動する。ここで、強磁場 (B_i)、低磁場 (B_f) 中における電子の運動方向の表面垂直方向からのズレを θ_i 、 θ_f とすると、角運動量保存則により、 $\sin \theta_f / \sin \theta_i = (B_f / B_i)^{1/2}$ の関係が成り立つ。よって、試料位置での磁場 B_i を大きくすることによって θ_i を小さくすることができ、弱磁場中では電子の向きが磁場方向を向くようになる。この手法を用いることによ

り、この装置では試料から真空側の全方位に放出されるオージェ電子をすべて検出器まで導くことができ、2 の捕集角度を実現している。

磁場によって平行化された電子は、 $E \times B$ 偏向電極によって入射ビームの軌道と分離された後、1m 離れたところに置かれた MCP（浜松ホトニクス社 F1094-31S）で検出される。MCP からの信号は高速タイミング前置増幅器（ORTEC VT120）で増幅された後、コンスタントフラクションディスクリミネーター（ORTEC 935）によりタイミング信号に変換される。TOF スペクトルは、MCP からのタイミング信号とパルス化装置のトリガー信号との時間差を時間波高変換器（ORTEC 566）を用いて測定することにより得られる。 $E \times B$ 偏向電極では電子だけではなく、試料から再放出された陽電子等の正の荷電粒子も同じ方向に偏向される。これが MCP に入るとオージェスペクトルのバックグラウンドになるので、この装置では $E \times B$ 電極から出た直後にメッシュ電極を置き、これに +100 V を印加することにより正の荷電粒子を排除している。逆に、この電極に負の電位を印加することにより電子を排除し、再放出陽電子の TOF 分析を行うことも可能である。

TOF 法のエネルギー分解能は、入射ビームのパルス幅によって制限される。入射ビームのパルス幅を狭くすれば分解能は良くなるが、ビーム強度が減ってしまい計数率が犠牲になる。また、飛行距離を長くして飛行時間を稼ぐことによっても分解能を改善できるが、装置が巨大になるという欠点がある。本装置では $E \times B$ 偏向電極と MCP 検出器の間に減速電位をかけることのできる長さ 60 cm の飛行管を導入し、その管内での飛行速度を落とすことによって飛行時間を引き延ばし、これによりエネルギー分解能を改善している¹⁰⁾。この方法では、注目するエネルギー領域については計数率を落とすことなく分解能を向上させることができる。得られるエネルギー分解能は、飛行管内の通過エネルギーを 30 eV としたとき、 $E \sim 2\text{eV}$ （半値幅）である。計数率は、Si $L_{2,3}$ VV オージェピークで毎秒約 30 カウントが得られている。オージェ信号にバックグラウンドがないので、この程度の計数率でも 1 ~ 2 分程度の蓄積で充分な統計精度のピーク強度を得ることができ、分単位であればオージェピーク強度変化の実時間測定も可能である。

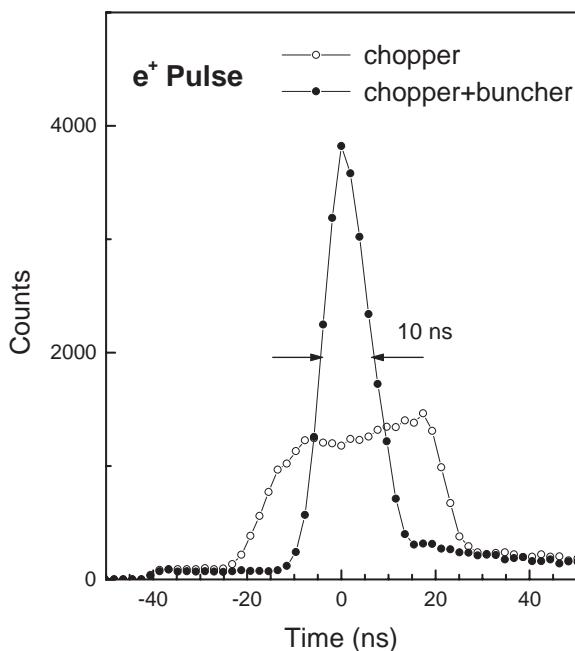


Fig.5 Time spectra of the annihilation rays obtained with only chopper (○) and those obtained with both chopper and buncher (●).

試料チェンバーの主ポンプは排気速度 600 L/s の磁気浮上ターボ分子ポンプ (セイコー精機STP-600) であり, その排気側に 70 L/s のターボ分子ポンプ (Varian V70LP), フォアライントラップ (アネルバ 956-7112), ロータリーポンプ (ALCATEL M2021) を接続している。また, 超高真空領域では, 液体窒素冷却のチタンサブレーションポンプ (アネルバ) も併用している。パルス化部および TOF 分析部は, 排気速度 100 L/s のイオンポンプ (日本真空技術 PST-100CX) で排気している。装置の到達真空度は 6×10^{-11} Torr である。低速陽電子ビームラインの真空度は 3×10^{-9} Torr 程度であるので, ビームラインと TOF-PAES 装置の間に内径 15 mm, 長さ 80 mm の細いニップルを挿入することにより, TOF-PAES 装置の真空度悪化を防いでいる。試料は PBN セラミックヒータ (信越化学社製) により約 1200 までの加熱, および液体窒素を用いて -120 までの冷却を行うことができるようになっている。試料ホルダーは Ta で製作し, 試料温度の測定には, W・Re 熱電対を Ta 管で覆ったものを用いている。また, ガス吸着実験のために, バリアブルリークバルブ (アネルバ) を介した 2 系統のガス導入系を取り付けている。

§ 4 測定例

Fig.6 は TOF-PAES スペクトルの測定例^{11,12)}であり, 試料は Si(100) 清浄表面およびこの表面を基板温度 -80 の状態で 10 Langmuir ($1 \text{ Langmuir} = 10^{-6} \text{ Torr} \cdot \text{s}$) の酸素分子 (O_2) ガスで曝露したものである。上側の軸には飛行時間から計算した電子のエネルギーを表示している。この測定は, 減速飛行管に -50 V の減速電位をかけて行った。O KLL オージェ電子 ($\sim 500 \text{ eV}$) については, 飛行管内の通過エネルギーが大きいので, 入射ビームのパルス幅で分解能が制限されているが, 通過エネルギーが 40 eV 以下となる Si $L_{2,3}$ VV オージェ電子 (70 ~ 90 eV) については, 分解能良くピーク形状が測定されている。

Fig.7(b)は, Fig. 6 の TOF スペクトルから得られた Si $L_{2,3}$ VV オージェピークのエネルギースペクトルである。Fig.8 には, シミュレーション計算により求めた装置のエネルギー分解能関数(a) およびその半値幅(b)を示している。減速電位 -50V の場合, エネルギー分解能は90 eVの電子に対して $E = 2.8 \text{ eV}$, 70 eV の電子に対して $E = 1.5 \text{ eV}$ である。Fig.7(a) は, PAES スペクトルとの比較のために測定した, 2keV 電子ビーム励起 AES(EAES) による Si $L_{2,3}$ VV オージェスペクトルである。EAES は市販の CMA (アネルバ社製) を用いて, 変調エネルギー $2eV_{p-p}$ の微分スペクトルを測定し, 数値積分を行った。

Fig.7(b)からわかるように, PAES により得られる Si(100) 清浄表面からの Si $L_{2,3}$ VV オージェピークは, 89 eV に鋭いピークを持ち, 低エネルギー側になだらかな裾を引いている。この測定では 45 eV の陽電子ビームを用いているので, $L_{2,3}$ VV ピークの領域にバックグラウンドは全く含まれていない。これは, Si 表面を 1 原子層の K で覆うと, PAES スペクトルには $\sim 50 \text{ eV}$ 以上の領域に信号が全く検出されないことから明らかである。これに対して EAES では, 二次電子のバックグラウンドが大きな傾きを持つため, ピークは歪んだ形で測定される。また EAES では, 表面数層下で発生したオージェ電子も観測にかかるので, バルクプラズモン損失によるピークが 72 eV 付近に現れる。PAES の場合には, オージェ電子は最表面だけから発生するので, このピークは現れない。

Si(100) 表面に基板温度 -80 の状態で 10 Langmuir

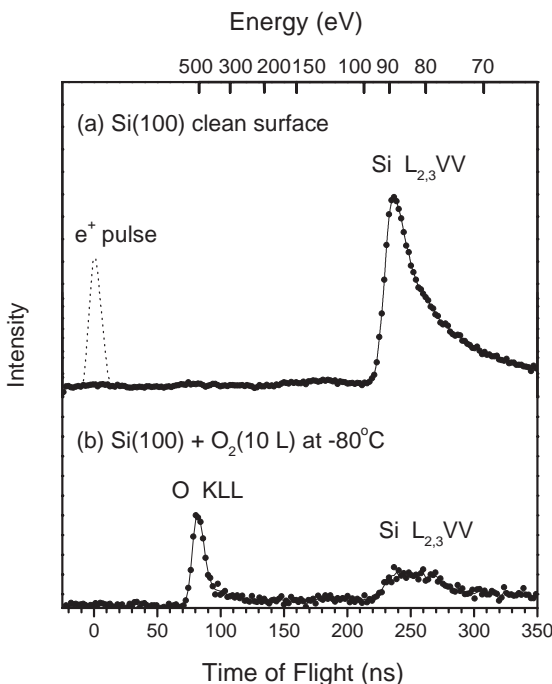


Fig.6 TOF-PAES spectra for clean and 10-Langmuir O_2 exposed Si(100) surfaces. The exposure was done at a substrate temperature of -80 .

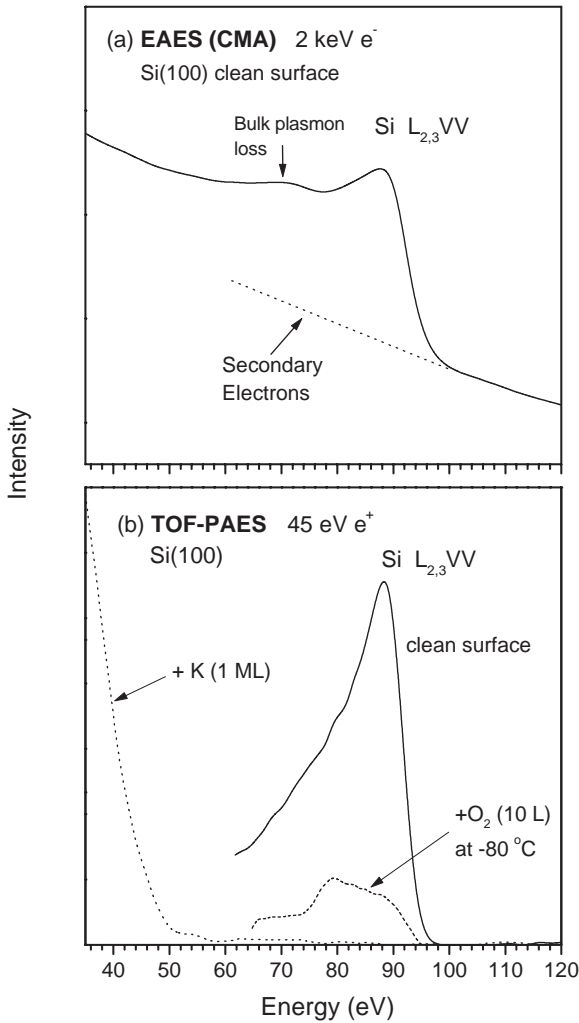


Fig.7 (a) Si L_{2,3} VV Auger lineshape obtained by 2-keV electron induced AES with a cylindrical mirror analyzer (CMA).
 (b) Si L_{2,3} VV Auger lineshapes obtained by TOF-PAES for clean Si(100), Si(100) exposed to 10-Langmuir O₂ at -80 °C, and K (1 ML) covered Si(100).

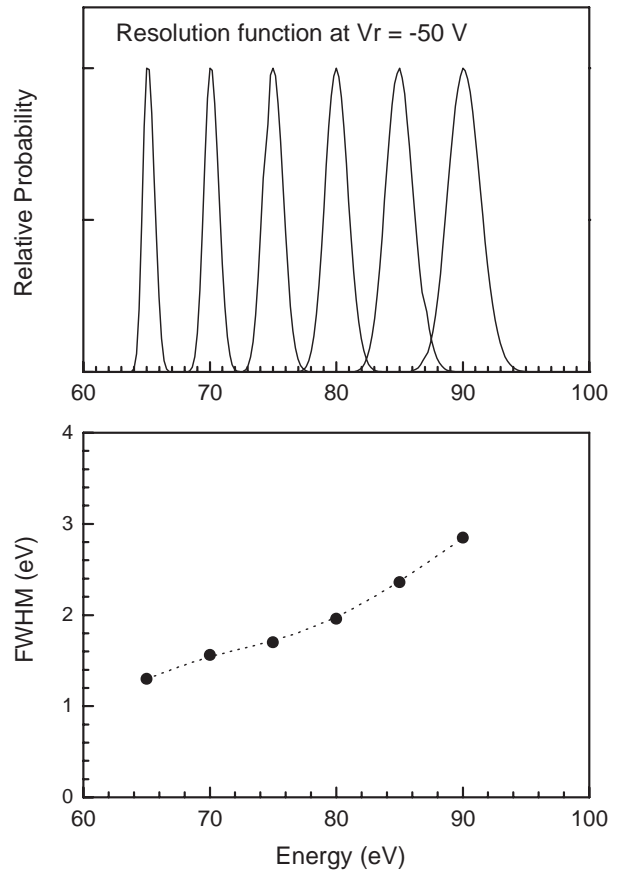


Fig.8 Calculated energy-resolution function and its full-width at half-maximum (FWHM) at a retarding potential Vr = -50 V.

の酸素分子(O₂)曝露を行うと、Si L_{2,3} VV オージェピークは高エネルギー側の強度が大きく減少し、79 eV付近に新たなピークが現れる。このピークは Si-O 結合の価電子準位が関与したオージェ遷移によるものであり、この結果から吸着酸素が最表面の Si 原子と化学結合していることがわかる。ただし、観測された化学シフトは、SiO₂ で得られる値 (-14 ~ -15 eV)¹³⁾ よりも小さく、低配位の酸化状態であると考えられる。

PAES が最表面層のみに敏感であることを示す例として、MoS₂(0001) 劈開表面の PAES および EAES スペクトルの比較を Fig. 9(a), (b) に示す¹⁴⁾。MoS₂ はグラファイトとよく似た層状物質であり、Fig. 9(c) に示し

たように、S-Mo-S 層がファンデルワールス力を介して結合した構造になっている。その劈開面は、最表面層が S で終端され、2 層目に Mo が位置する¹⁵⁾。EAES では表面下数原子層が検出にかかるので、S(LVV 150 eV)だけでなく、2 層目以下に位置する Mo(NMM 180 eV)も検出される。これに対して、PAES で検出されるのは最表面層の S だけであり、2 層目の Mo は検出されない。このように、PAES では物質最表面層を構成する元素の種類を容易に同定することができる。

これまでの PAES 装置は計数率が非常に低かったために、1つのスペクトルを得るのに数時間~数日以上を必要とし、オージェピーク強度の時間変化等の測定を行うことは難しかった。TOF-PAES 装置では、1~2分程度で十分な統計精度のオージェピーク強度が得られるので、分単位であれば表面状態の時間変化等を調べることが可能である。この例として、Si表面上の吸着酸素の分析結果^{11,12,16)}を紹介する。この実験では Si(100) 清浄表面に 90 Langmuir の酸素分子 (O₂) ガス曝露を

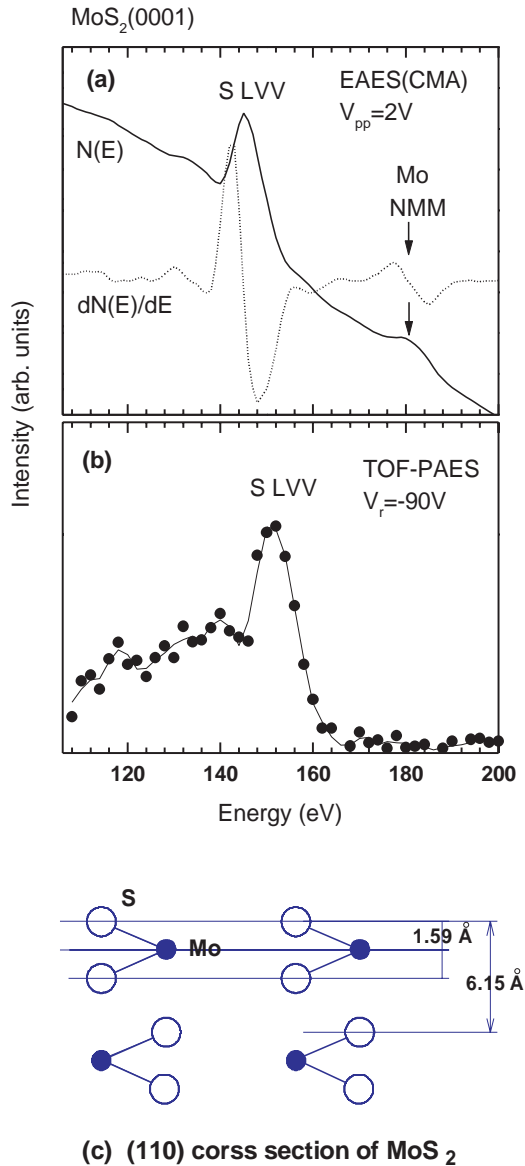


Fig.9 EAES (a) and PAES (b) spectra for MoS₂(0001) surface. (c) (110) cross section of MoS₂.

行い、曝露直後から TOF-PAES によるオージェピーク強度の時間変化を測定した。Fig.10 の結果からわかるように、酸素のオージェピーク強度は時間とともに減少し、逆に基板の Si のピーク強度は増加する。PAES では、最表面層の上に位置する吸着種との消滅確率が特に高いので、Fig. 10 の結果は最表面上の吸着酸素量が時間が経つにつれて減少していることを意味している。また、酸素ピーク強度の減少は基板温度が高いほど早く、逆に -100 の低温では酸素ピーク強度はほとんど減少しないことから、基板温度が低いほど酸素が最表面上にとどまっている時間が長いことがわかる。通常、酸素ガス曝露による Si (100) 表面の酸

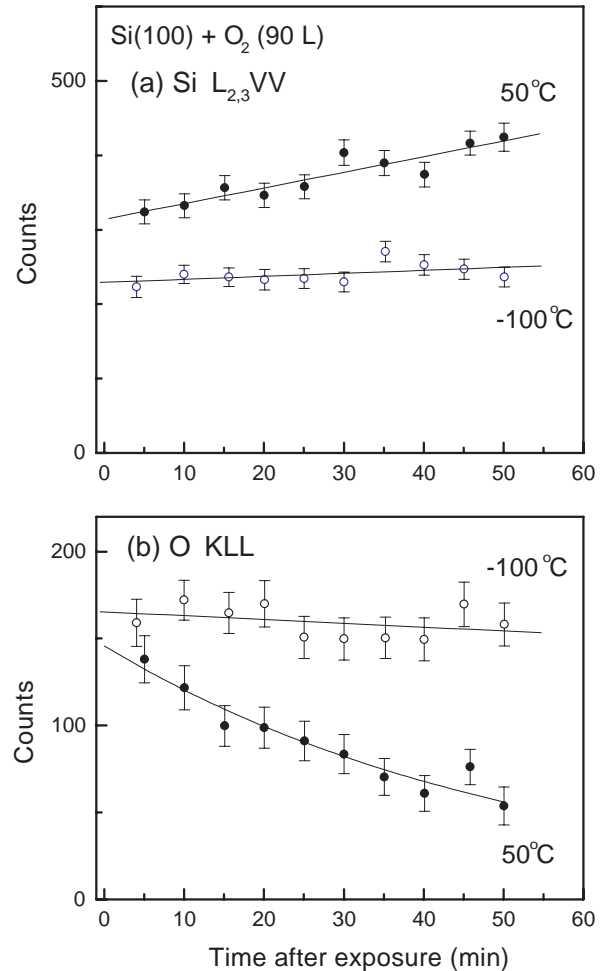


Fig.10 Time dependency of Si-LVV (a) and O-KLL (b) Auger intensities measured for Si(100) exposed to 90-Langmuir O₂ at substrate temperatures of -100 and 50 .

化は、基板温度が高いほど反応が早く進むことが知られている¹⁷⁾。PAES の結果は、Si (100) 表面上には準安定な酸素吸着状態が存在し、この状態を経てバックボンドの酸化等の反応が起こっていることを示唆している。この系における PAES 分析の利点は、ビームによる照射効果が無視できることである。電子励起 AES や X 線光電子分光法によるシリコン酸化表面の分析では、プローブビームの照射効果が大きく、酸素の脱離等が問題となる。前述したように、TOF-PAES では数 10 eV の低エネルギービームを用い、極めて少ない照射量 (<10⁹ e⁺/cm²) でスペクトルを得ることができるので、ビーム照射効果が観測にかかることはない。実際、数時間程度の連続測定を行っても、ビーム照射による酸素ピーク強度の減少は全く観測

されないことを確認している。このように、PAES は最表面上の準安定な吸着状態や、結合の弱い吸着種などの分析に特に有効であると考えられる。

§ 5 おわりに

TOF-PAES 装置の開発およびこれを用いた測定例について述べた。この装置は、計数率、エネルギー分解能ともに従来の PAES 装置よりも格段に優れており、これまで不可能であった PAES によるオージェピーク形状分析や、表面状態の時間変化などの測定にも利用できるようになってきた。しかし、特にエネルギー分解能は、未だ他の電子分光法 (EAES, XPS, UPS) のレベルには達していない。今後の課題は、さらにエネルギー分解能を向上させて、物質最表面の電子構造のより詳細な情報が得られるようにすることである。そのためには、現在よりも高強度の短パルスビームが必要であり、パルス化装置のバンチング効率の向上や、より効率の良い低速陽電子ビーム発生法の開発等を行っていかねばならないと考えている。また、各元素に対する検出感度の定量化も重要な課題であり、他の定量的な表面分析法との比較実験を行うとともに、陽電子の表面束縛状態および内殻励起確率の理論計算の開発を行う必要がある。

EAES, XPS, UPS 等が無い PAES 最大の利点は最表面選択性であり、今後さらにエネルギー分解能や計数率を向上させて、物質最表面のより詳細な情報が得られるようになれば、シリコン酸化膜形成プロセスなど高機能材料の表面反応の研究分野で大きな力を発揮することが期待される。

参 考 文 献

- 1) A. Weiss, R. Mayer, M. Jibaly, C. Lei, D. Mehl, and K. G. Lynn: Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 2245; A. Weiss : "Positron Spectroscopy of Solids" (Ohmsha, Tokyo, 1995) 259.
- 2) R. Mayer, D. Becker, A. Schwab, and A. Weiss : Rev. Sci. Instrum. **61** (1990) 42.
- 3) R. Suzuki, T. Ohdaira, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, and T. Yamazaki : Appl. Surf. Sci. **100/101** (1996) 297.

- 4) T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado, and T. Yamazaki : Mat. Sci. Forum **255-257** (1997) 769.
- 5) K. O. Jensen and A. Weiss: Phys. Rev. **B41** (1990) 3928.
- 6) A. Weiss, D. Mehl, A.R. Koymen, K.H. Lee, and C. Lei : J. Vac. Sci. Technol. **A8** (1990) 2517.
- 7) 三角 智久, 山崎 鉄夫, 鈴木 良一, 千脇 光國, 富増 多喜夫, 千葉 利信, 赤羽 隆史, 塩谷 亘弘, 谷川 庄一郎 : 放射線 **15** (1988) 78.
- 8) T. Akahane, T. Chiba, N. Shiotani, S. Tanigawa, T. Mikado, R. Suzuki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, and T. Tomimasu : Appl. Phys. **A51** (1990) 146.
- 9) P. Kruit and F. H. Read : J. Phys. **E16** (1983) 313.
- 10) T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki : Appl. Surf. Sci. **116** (1997) 177.
- 11) T. Ohdaira, R. Suzuki, and T. Mikado : Surf. Sci. **433-435** (1999) 239.
- 12) T. Ohdaira, R. Suzuki, and T. Mikado : Appl. Surf. Sci. **149** (1999) 260.
- 13) H.H. Madden : J. Vac. Sci. Technol. **18** (1981) 677.
- 14) T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado, H. Ohgaki, M. Chiwaki, T. Yamazaki, and M. Hasegawa : Appl. Surf. Sci. **100/101** (1996) 73.
- 15) B.J. Mrstik, P. Kaplan, T. Reinecke, M. Van Hove, and S.Y. Tong: Phys. Rev. **B15** (1977) 897.
- 16) T. Ohdaira, R. Suzuki, T. Mikado, and T. Yamazaki: J. of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **88-91** (1998) 677.
- 17) F. Lutz, J.L. Bischoff, L. Kubler, and D. Bolmont: Phys. Rev. **B40** (1989) 10356.

(1999.11.30受付)