

Shoichiro Tanigawa

Institute of Materials Science, University of Tsukuba

ABSTRACT

Slow/monoenergetic positron beams have recently become a powerful probe for solid surfaces and near-surface phenomena. Various positron spectroscopies yield complementary information to corresponding electron spectroscopies, while pair annihilation phenomena with various modes, positron localization into open-volume lattice defects and spontaneous re-emission processes as a positron or a positronium provide unique possibilities to probe defects, electronic structures and so on. The present talk will be focussed on the present status of the generation and application of slow/monoenergetic positron beams and their future prospects.

低速陽電子の発生と利用：現状と将来

1. はじめに

陽電子と物質の相互作用は、極めて多彩であり、1950年代の終わり頃から、金属のフェルミ面の研究に利用されたのを皮切りに、様々な応用分野を産みだしてきた。早くから利用されたのは、電子との対消滅現象であり、その中で、特に2光子消滅の角度相関に着目した固体中の電子運動量分布の測定が、陽電子を電子構造プローブとして位置付けた。さらに、1960年代の後半から、原子核密度の低い原子空孔型の乱れた格子における陽電子の捕獲現象が見出され、格子欠陥プローブとしての利用が開始され、陽電子寿命や消滅 γ 線エネルギーのドップラー拡がりの測定が広く行われるようになった。この段階迄は、 β^+ 崩壊により生ずる広いエネルギー分布を持つ、最大数百 keVの陽電子ビームが、そのまま使われ、言わば、白色陽電子線と言うべきものであり、バルク試料全体としての情報が利用されてきた。近年、強度の高い低速かつ単色の陽電子ビームを得る方法の確立とともに、陽電子の粒子それ自身としての応答である、回折効果、エネルギー損失現象、再放出現象に基礎をおいた表面・界面プローブとしての利用が開始されている。これと平行して、陽電子の再放出現象とエネルギー損失を巧妙に利用して、保存系におけるLiouvilleの定理の制約を逃れて、輝度の高いビームを得る方法が考え出され、3次元微小領域に焦点を絞ったマイクロ・プローブとしての利用が進められている。このマイクロ・ビーム化の動向は、陽電子の高透過性、非多重散乱性、非破壊性等の潜在力を特徴とする透過型陽電子顕微鏡 (TPM) の実用化意欲をかきたてさせている。プローブとしての陽電子の発展は、上述したように、白色ビーム→低速/単色ビーム→高輝度ビームの道であったと言える。ここ

では、低速/単色陽電子の発生技術、それを可能にした陽電子-固体相互作用の現在の理解、利用技術の現状と将来を展望する。

2. 低速/単色陽電子の発生に関する陽電子-固体相互作用

表面に入射した陽電子の一部は弾性的に散乱され、電子の場合のLEEDに対応してLEPDを生ずる。また試料表面層での電子遷移、プラズモン励起などにより、熱化未完了のままそのエネルギーの一部を失って表面から放出される陽電子のエネルギー分布は、電子の場合のEELSに対応してPELSを与える。試料中で十分に熱化された陽電子は、低速陽電子、ポジトロニウム(Ps)として固体外に放出され、その時の運動エネルギーは陽電子、Psの仕事関数に対応する。この過程が低速陽電子の発生に利用されている。また試料中で熱化され表面に拡散して戻ってきた陽電子の一部は、表面のイメージ・ポテンシャルの井戸中に束縛され、表面状態陽電子となる。これが、さらに熱励起によりPsを形成する過程もある。表面や表面近傍層には、格子欠陥、酸化物層が存在することが多い。このような欠陥や酸化物の非晶質相は、陽電子をトラップし表面への拡散の障害となる。従って、表面での低速陽電子およびPsの収率から、陽電子の拡散や格子欠陥分布の情報が得られる。また試料中で電子と対消滅した陽電子は、多くの場合、2光子消滅過程で消滅し、 $\gamma-\gamma$ 角度相関、消滅 γ 線のドップラー拡がりの形で物質中の電子状態の情報を伝える。また陽電子の寿命は、消滅場所での電子密度に逆比例するので、格子欠陥種の同定、格子欠陥濃度の決定に利用できる。従って、入射陽電子のエネルギーの関数として、消滅特性を($\gamma-\gamma$ 角度相関、消滅 γ 線のドップラー拡がり、陽電子寿命)を測定すれば、表面からの深さの関数として電子状態、格子欠陥の分布状態を知ることができる。

次に、陽電子と表面との相互作用を、電子のそれと比較してみる。正イオンをジェリウム・バックグラウンドと近似するとジェリウムは表面で鋭く切断されるのに対して、電子の方は真空中にしみだす。このため電気2重層が表面に生じ、双極子障壁 $\Delta\phi$ が現れる。 $\Delta\phi$ は電子に対しては、これを固体内に閉じ込める作用をするが、陽電子に対しては、逆に固体外に締め出す作用をする。このため、陽電子は、固体中よりも真空中で、低いポテンシャルを感じ、負の仕事関数を示すことが多い。この事実が低速陽電子発生の原理である。

3. 低速陽電子の発生法

低速陽電子発生のための一次陽電子源を大別すると、放射性同位元素を利用するもの、加速器の中でも電子リニアックを用いて対生成で得られる陽電子を利用するもの、また粒子加速器を用いて短寿命の放射性同位元素を生成し、その崩壊陽電子を利用するものが挙げられる。第一の方法としては、100mCi程度の ^{22}Na 、500mCi程度の ^{58}Co が研究室レベルで利用されているが、最近、熱中性子束が $10^{15}\text{n/s}\cdot\text{cm}^2$ の原子炉照射により、100Ci以上の ^{64}Cu を作り、高強度の一次陽電子線の利用が開始され、注目されている。第二の方法は、高エネルギー電子線 \rightarrow 制動放射 γ 線 \rightarrow 電子対生成、の機構で陽電子を発生させる。陽電子発生用ターゲットとしては、臨界エネルギー、放射距離、放射化等の点からTaを利用することが多い。第三の方法は、ヴァン・デ・グラフ加速器からの数MeVの陽子ビームをBターゲットにあて、 $^{11}\text{B}(p,n)^{11}\text{C}$ の反応により陽電子放出核 ^{11}C を利用するもので、一例の報告がある。第一、第二の方法では、発生し

た高エネルギー陽電子を減速材に入射し、そこで熱化させる。その一部は表面まで拡散によって戻ってきて、低速陽電子として再放出される。従って良い減速材の条件としては、(i) 陽電子の仕事関数が負であること(経験的には、水素の溶解エンタルピーが負で大きな金属が良い)、(ii) 密度、原子番号が大きく、陽電子の入射深度が浅いこと、(iii) 陽電子の拡散定数が大きく、表面まで戻ってきやすいこと、(iv) 結晶の完全性が高く、陽電子をトラップする格子欠陥が少ないこと、(v) 表面に戻ってきた陽電子の再放出分岐率が大きいこと(表面修飾によるイメージ・ポテンシャルの調節)、等が挙げられる。現在まで種々の減速材が試みられたが、背面反射方式ではCu(111)面、透過方式では高温加熱によりbamboo-likeとなったタングステンが多く利用されている。変換効率は $10^{-3} \sim 10^{-4}$ の程度であるが、希ガス固体では 10^{-2} 以上の効率を示すものも見出されている。この場合、低速陽電子の再放出機構は、負の仕事関数によるものではなく、Ps形成のsub-excitationによるものであり、エネルギー分解能は10数eVの拡がりを示すが、目的によっては積極的に利用すべきチャンネルである。また半導体、絶縁体への電場印加と陽電子のmobilityを組み合わせた方法も提案されている。(i)~(v)の条件に戻れば、厚さ数千Åの完全性の高い薄膜単結晶が理想的である。現在まで報告された最高の低速陽電子強度は、80Ciの ^{64}Cu を使った $10^7 \text{e}^+/\text{s}$ 、電子リニアックを使った $8 \times 10^8 \text{e}^+/\text{s}$ であるが、前者はDCビームで12.7hrの半減期、後者はパルスビームの違いがある。利用サイドで考えると、DCビームの方が便利な場合が多く、電総研、無機材研、理研を中心としたグループが、電子リニアックをベースとし、直流化の技術を既に開発し、 $10^8 \text{e}^+/\text{s}$ 以上のDCビームの発生の見通しを得ており、量、質の両面で世界のトップに躍り出ている。

4. 低速陽電子の利用

さて、低速陽電子の発生が可能となると、色々な利用法が考えられ、その一部は既に行われている。第一に、電子と類似の利用法であり、(a) 低速陽電子回折(LEPD: 表面感度においては電子より高く、多重散乱においてはX線と同等)、(b) 陽電子エネルギー損失分光(PELS: 低バックグラウンド、気体による散乱小)、(c) 反射型高速陽電子回折(RHEPD: 低内部ポテンシャル)、(d) 透過型陽電子顕微鏡(TPM: 高透過性、非多重散乱性、非破壊性)が挙げられる。第二に、陽電子に特有なものとして、(e) 再放出陽電子エネルギー分光(RePES: 表面電気2重層、吸着、蒸着、表面・界面欠陥)、(f) ポジトロニウムの放出分光あるいは陽電子中性化分光(PsFS or PNS: 検出容易な終状態、表面第一層の状態密度)、(g) 消滅誘起イオン脱離(ASID)などが挙げられる。第三に、従来の陽電子消滅実験の局所化、すなわち、マイクロ陽電子消滅アナリシスである。これらの現状と将来について、講演時に詳しく私見を述べるが、ここでは、 $10^{10} \text{e}^+/\text{s}$ あるいはnAオーダーの高強度低速陽電子線の出現が一つのブレークスルーとなることを示して予稿の結論としたい。今、TPMを一万倍の倍率で使用することを考える。MCPを使い、肉眼で観察するには、 $10^{-13} \text{A}/\text{cm}^2$ の陽電子が必要である。画面を $10\text{cm} \times 10\text{cm}$ とすると、これは 10^{-11}A となる。高輝度化ステージを2段使い、入射ビームを $1 \mu\text{m}$ にビームを絞ると、一次低速陽電子線は 10^{-10}A が必要となる。また、電子を使う多くの分析法では、試料の帯電、ダメージ等の点から、ビーム強度を下げる傾向にあり、nA台で競合できると考えるからである。