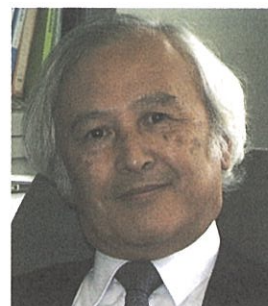


# ■陽電子を用いた表面・界面研究： 高度に制御された陽電子ビームで 何ができるか



陽電子表面研究グループ ■ 一宮 彪彦 ■

## 1. はじめに

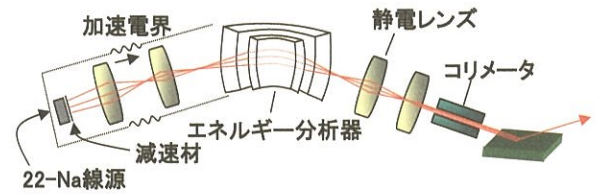
固体表面の研究はラングミュアによる白熱電球の寿命の改善の問題から始まっているように、もともと工業上の要請から基礎的な研究へと移行した典型的な例の一つである。またトランジスタの発明に始まる集積回路の構築や、さらに触媒反応の解明など、これらの表面・界面を介する多くの応用上の問題点を解明するために、半導体や金属の表面・界面研究は進んできた。これらの工業上の要請をクリアするために、表面の原子構造研究を始め、多くの基礎的な研究が行われ、それに伴って、表面再構成や、表面電子準位など多くの表面特有の興味深い現象も見出されてきた。最近のナノテクノロジーの展開では、それを舞台とする表面・界面の物性のより詳細な研究を必要としている。

結晶の表面・界面はそこで結晶の周期性が切断されているために、量子力学的現象の理論的な取扱は非常に難しく、現象の解明はどうしても実験主導となっている。このことは、多くの実験家を勇気づけ、表面研究のための非常に多くの手法が開発されている。それにもかかわらず、表面の原子および電子構造や熱的性質に関しては、まだ十分に分かったとはいえないことと、それを解明する決定的な方法がなく、いくつかの手法を組み合わせてやっと結晶表面の物性が明らかになりつつある状況である。したがって、既に非常に多くの測定手法が開発されているにもかかわらず、まだまだ新しいアイデアによる研究手法が求められている。界面に関しては、まだまだ発展途上であり、X線回折や電子顕微鏡法にかわる新しい手法の開発も待た

れている。我々のグループは、良く制御された陽電子ビームを用いて、今までの手法では得られなかった、表面物性の解明を目指している。既にこれまでの研究で、特に陽電子の全反射領域で、回折強度の振る舞いに、電子回折からは予想できなかった効果も得られ始めている。

## 2. 陽電子ビームを用いて何ができるか？

陽電子ビームを用いた表面研究では、低速陽電子回折法 (LEPD) が有名である。この手法は低速電子回折法 (LEED) の電子を陽電子で置き換えることによって、電子散乱で起きる交換相互作用の効果を消すことができる利点がある。最近の電子計算機の発展に伴い、LEED による計算の精度は非常に上がり、交換相互作用の問題は解決され、電子を陽電子で置き換えただけの LEPD はその役割を終えてしまった。しかし、LEED による表面構造解析の精度は上がったとはいえ、まだまだ、構造が一意的に決まるところまでは到達していないのが現状である。では反射高速陽電子回折 (RHEPD) はどうなのか？ 高速陽電子は結晶における散乱過程で、断熱ポテンシャルを用いることができる。その結果、結晶の内部ポテンシャルによる全反射が観測され、全反射臨界角も明確に決定できる。また高速陽電子の場合、波長が原子間隔の10分の1以下であり、その結果、全反射領域においても、表面の原子配列による回折を観測できるはずである。このため、全反射を用いることによって、表面の物性をバルクとは切り離して、独立に測定できるメリットがある。一



方、LEPD の場合には、陽電子の速度が遅いため、結晶表面における散乱で、結晶内部の電子分布が変化し、それによる内部ポテンシャルの値の変化がおきるために、状況は複雑である。高速陽電子回折を表面研究に用いる理由は、結晶による散乱過程の取り扱いが、簡単であることと、後で述べるように全反射領域における反射強度の理論的取扱が容易なことが上げられる。このように、陽電子回折による表面研究はこの全反射の効果を利用することが最大の武器である。X線回折においても全反射が起きるため、X線を用いた表面研究も全反射を利用しているが、X線の全反射によるエヴァネッセント光の進入深さは10nmもあるのに対し、陽電子の全反射では1nm以下であり、陽電子による全反射法はきわめて表面敏感な方法である。

陽電子は反粒子であり、結晶内の電子との間で、対消滅を起こすことは良く知られている。この陽電子消滅の手法を用いて、結晶内の電子の運動量分布などを含め、多くの物性研究が行われている。陽電子が、結晶内の欠陥に捕獲されやすい性質を用いて、欠陥構造や分布の研究も広く行われている。そこで、よく制御された陽電子ビームを用いて、陽電子の進入深さを制御することにより、欠陥の深さ分布や界面に形成される欠陥構造の解析も行うことが出来る。

陽電子回折法と陽電子消滅分光法を相補的に用いることにより、表面および界面における多くの物性の解明が可能になる。特に、薄膜成長や結晶成長などに重要な、表面の原子の熱振動振幅や表面融解の研究はこの2つの手法を組み合わせることにより飛躍的に向上する。また後に述べるように、従来の手法でも可能な表面原子構造の決定においても、全反射領域におけるRHEPD強度の入射角依存性（ロッキング曲線）を用いると非常に迅速な解析が可能となる。

### 3. 高度に制御された陽電子ビーム

陽電子回折や陽電子消滅分光法による表面・界面の研究を行うためにはビームの平行性とエネルギーが非常に良く制御されている必要がある。特に、陽電子回折では、可干渉性距離が大きい必要があり、そのためには高輝度陽電子源を用い、さらに、単色性を高めなければならない。図1は第1世代の高速陽電子回折装置の模式図と写真である。可干渉性を高めるために、

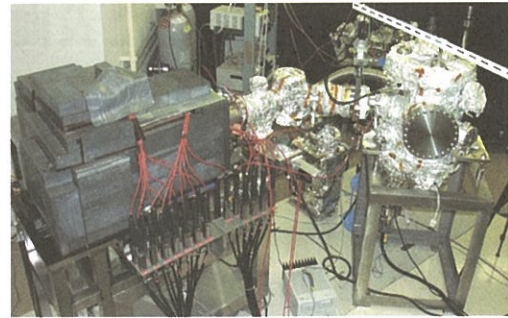


図1 高輝度可干渉性陽電子ビームを用いた高速反射陽電子回折装置。

Na線源から放出される高速の陽電子をタングステン結晶により減速し、それを20keVまで再加速した後、静電レンズにより誘導し、磁場偏向型モノクロメータによって単色化している。このモノクロメータを用いることにより、減速材を通過する高エネルギー陽電子成分を取り除くことにも成功している。さらに、陽電子発生部分も、ビーム・シミュレーションにより最適化を図ることによって、可干渉性の高い単色陽電子ビームを得ることが出来ている。モノクロメータにより単色化したビームはさらに静電レンズおよびコリメータを用いて、平行ビームとし、高度な陽電子回折実験に耐えうる良質なビームを得ることに成功した。図2

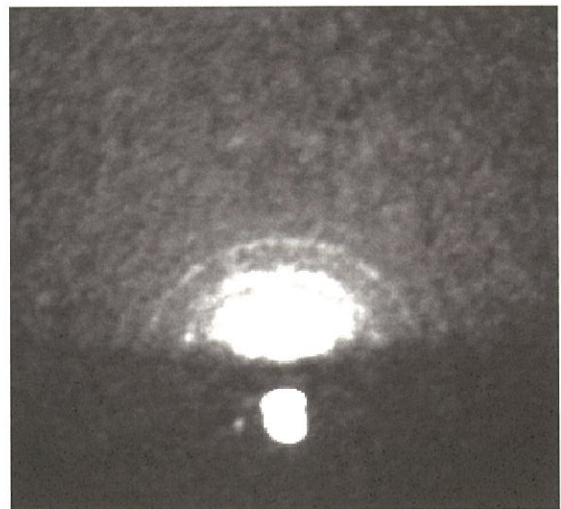


図2 Si (111) 7×7表面からのRHEPD図形。

はこのビームを用いて、得られた Si (111) 7×7 表面からの世界初の RHEPD 図形である。このように、7×7 構造の分数次回折スポットを得るためには、単色性が良く、可干渉長の大きいビームであることが必要条件であり、得られたビームは十分にその要求を満たしている。

#### 4. 全反射高速陽電子回折による表面構造解析

図 2 に示すような Si(111) 7×7 表面からの RHEPD 図形および図 3 (a) に示す RHEPD 強度のロッキング曲線の測定結果を動力学的 RHEPD 計算によって解析することによりこの表面の原子構造を決定することが出来る。図 3 (a) のプロットは実験結果であり、プロットに重ねて、計算結果を実線で示した。この曲線の下に示した曲線は RHEED の解析によって得られた構造を基に計算したロッキング曲線である。実験結果に比べて、かなり一致が悪いことがわかる。RHEPD によって得られた結果は、図 3 (b) に示す Si (111) 7×7 構造の最上層に位置するアダトムの位置が RHEED で得られた結果よりも約 0.2 Å 真空側にシフトさせたときに良い一致を示した。この 0.2 Å シフトした値は、RHEED 解析ではまだ許容できる範囲であり、このことから、RHEPD による表面原子構造解析は非常に精度が高く、しかも信頼できるものであることが分かる。

Si (111) 7×7 構造は非常に平坦で、完全性の高い

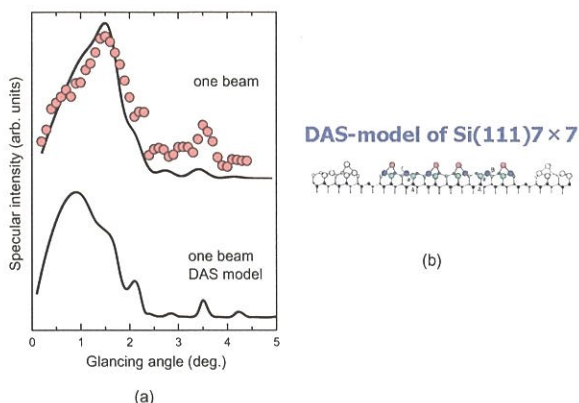


図 3 Si (111) 7×7 表面からの (a) ロッキング曲線と (b) Si (111) 7×7 DAS 構造模型。

表面が得られ、既に非常に良く研究されている。そのため測定手法の信頼性を確かめるためには最適な表面であり、この表面に対して、LEED や RHEED とほとんど差の無い結果が得られたことは、全反射高速陽電子回折の手法が、信頼性が高いばかりではなく、精度も十分ある優れた方法であることを示している。この Si (111) 表面は熱振動や相転移などについて、まだ分からないことが多い興味深い表面である。最近われわれは初期的結果ながら、全反射領域の RHEPD 強度の温度変化から表面デバイ温度がバルクの約 70% 程度であるという結果を得ている。

Si (111) 7×7 表面以外にも、水素終端 Si (111) 表面や SiC (0001) 表面の酸化過程についての研究を RHEPD 強度ロッキング曲線の解析により行っている。水素終端表面の解析では、Si (111) 上に SiH<sub>3</sub> 分子が吸着している構造を提案している。この構造は、Si (111) 7×7 構造上の水素吸着構造とも類似であり、信頼性の高い結果を得ている。また SiC 表面の酸化についても、Si-O 結合距離が 1.9 Å であることを示し、LEED の結果よりも 0.2 Å 長いことを示した。このように、全反射高速陽電子回折では、特に表面垂直方向の原子位置について、かなり一意的に決定することが出来る。

#### 5. 制御された陽電子ビームによる陽電子消滅分光

陽電子消滅分光法は陽電子を用いた物性研究手法として確立した方法である。熱エネルギーまで減速した陽電子は結晶中の欠陥や空孔に捕獲されやすい性質を持ち、これを用いることにより、結晶内の欠陥密度や分布、またその電子状態に関する知見を得ることが出来る。陽電子ビームのエネルギーを制御し、陽電子の打ち込み深さを制御することによって、陽電子消滅分光法により、表面や界面の欠陥や空孔の深さ分布を測定することが出来る。図 4 は SiC の n 型 MOS 界面について、欠陥の密度を示す因子である、S パラメータを陽電子の打ち込みエネルギーと金属電極と基板間の電圧の関数として測定した結果である。負電圧の場合、陽電子は金属電極側に引き戻されるように働く。ここから明らかなように、バイアス電圧が正の場合 (+5 V) では陽電子は基板に引き込まれるため、S パラメ

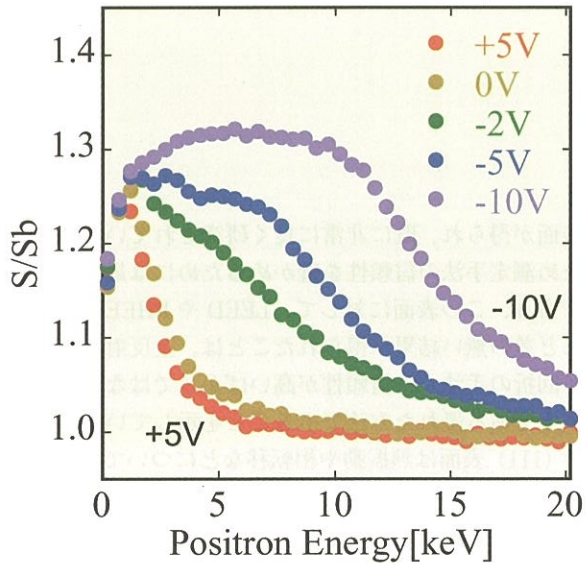


図4 SiC (0001) MOS 界面の陽電子消滅分光法による S パラメータの入射陽電子エネルギーおよびバイアス電圧依存性。

ータの値は 5 keV 以上の打ち込みエネルギーではほとんどバルクの SiC の値を示しているとともに、バイアス電圧が印加していないときとほとんど差が無い。それに対して負のバイアス電圧が印加されると S パラメータのピークの位置は高い打ち込みエネルギーの方向にシフトし、界面に欠陥が集中していることを示唆している。このように、陽電子の打ち込みエネルギーを制御することにより、欠陥の深さ方向分析が可能になり、特に反射回折法では不可能な界面の知見を得るのに非常に有力な方法である。

## 6. 今後の展開

全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) 法はバルクと切り離して表面の物性を測定することの出来るほとんど唯一の方法である。この手法を用いて、表面物性の研究に欠かせない、表面原子構造および吸着構造の決定を行う。また従来の方法では、難しかった、表面原子の熱振動振幅の測定は、全反射領域における回折強度の温度変化から直接測定できるものであり、画期的な方法である。この手法により、表面デバイ温度の測定はもとより、相転移に伴う原子変位についての知見も得られる。このために、特に相転移温度の低い Si(111) 表面の銀および金吸着系について、実験を行う予定である。さらに表面融解の機構について、融点の低い鉛の単結晶表面について、実験を行う予定である。また融解に伴う表面欠陥の生成を調べるために、ビーム制御陽電子消滅分光法を用いる。

SiC はパワーデバイスの素子基板として注目されているが、理想的な MOS 界面の形成が難しく、特に酸化過程についてその解明のための強力な手法が求められており、TRHEPD とビーム制御陽電子消滅分光法を組み合わせることで、その突破口が開かれることが期待される。