

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月21日現在

機関番号：32660

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K21424

研究課題名(和文)陽電子対消滅によるサイト選択的イオン脱離過程の研究

研究課題名(英文)Site selective ion desorption induced by positron-annihilation

研究代表者

立花 隆行 (Tachibana, Takayuki)

東京理科大学・理学部第二部物理学科・研究員

研究者番号：90449306

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：陽電子対消滅に誘起されるイオン脱離機構の解明を進めた。陽電子と電子入射によるイオン脱離を比較したところ、陽電子入射の場合にはイオン脱離収率が桁違いに大きいことや、その収率は入射エネルギーにほとんど依存しないことが明らかになった。また、脱離イオン種に明らかな違いがあることがわかった。これらの結果は、陽電子入射によるイオン脱離は主として対消滅によって起こり、陽電子の消滅サイト選択性に起因する原子選択的な脱離を引き起こすことを示唆している。さらに、陽電子が対消滅する際に放出する消滅ガンマ線のエネルギースペクトルを測定し、その測定結果が提唱した脱離モデルと矛盾しないという結果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで測定の困難さ故に陽電子ビームに誘起される表面の動的過程を対象とした実験的研究は皆無であった。本研究は「陽電子対消滅によるイオン脱離の観測実験」を発展させて、この未開拓の分野に本格的な実験的研究を展開することを試みた。その結果、陽電子ビーム入射に特有の脱離現象の観測に成功した。これらの成果や知見は、陽電子ビームを利用した新たな表面分析法や表面改質法の開発に繋がる重要なものである。

研究成果の概要(英文)：Positron- and electron-stimulated desorption of positive ions from a titania surface have been investigated. The results indicate that positron-stimulated desorption of  $O^+$  ions is predominantly caused by pair annihilation of surface-trapped positrons with inner-shell electrons. The ion desorption from water chemisorbed on the titania surface was also observed. It found that the desorption of specific ions was enhanced by positron annihilation, above the ion yield with electron bombardment. This finding indicates that annihilation-site selectivity of positrons results in site-selective ion desorption from a bombarded surface.

研究分野：表面物理

キーワード：陽電子 電子遷移誘起脱離 原子分子 量子ビーム

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

研究申請者は最近、電子の反粒子である陽電子を固体に入射すると、対消滅によって固体表面を構成する原子がイオンとなって脱離する現象を発見した。陽電子対消滅による脱離反応過程は固体表面における陽電子の消滅サイト選択性や局在性が関係していると考えられるが、詳細については不明な点が多い。

### 2. 研究の目的

優れた物性プローブとして陽電子ビームの利用が急速に広がっている現状において、陽電子と固体表面の相互作用を理解することは重要である。しかしながら、測定の困難さ故に陽電子ビームに誘起される表面の動的過程を対象とした実験的研究はこれまで皆無であった。本研究は最近観測に成功した「陽電子対消滅によるイオン脱離の観測実験」を発展させて、この未開拓の部分に本格的な実験的研究を展開することを目的とする。特に、陽電子入射によっておこるサイト選択的なイオン脱離現象など、陽電子ビーム入射に特有の脱離ダイナミクスの過程を明らかにする。

### 3. 研究の方法

(1) 電子衝撃によるイオン脱離機構の研究報告例が多い二酸化チタン清浄表面を試料として、同一試料における陽電子対消滅誘起イオン脱離と電子衝撃イオン脱離の観測をおこない、陽電子対消滅誘起イオン脱離現象の知見を得る。「陽電子対消滅」過程と「陽電子衝撃」および「電子衝撃」過程からの脱離現象の違いを比較して、陽電子対消滅に特有の脱離反応を明らかにする。

(2) (1)で得られた成果をもとに、陽電子対消滅誘起脱離のサイト選択性を明らかにする。二酸化チタン表面に異種分子を吸着させて、脱離イオン種と脱離収率を比較する。これらの結果から、陽電子対消滅によるサイト選択的な脱離の特徴を明らかにする。

### 4. 研究成果

陽電子ビームの照射によって起こる二酸化チタン結晶表面での脱離 $O^+$ イオン収率の入射エネルギー依存性を測定した。陽電子の入射エネルギーが10eVから500eVの範囲において、 $O^+$ イオン脱離収率はほぼ一定であることが明らかになった。この結果から、イオン脱離が主として陽電子と表面の電子との対消滅で起こることがわかった。また、陽電子入射と陽電子入射によるイオン脱離現象を観察するために、電子銃本体と電子線をパルス化するための電子回路を新たに開発し、パルス幅20ns以下のパルス電子ビームの生成に成功した。電子銃を装置に取り付けて陽電子入射と陽電子入射によるイオン脱離を観測したところ、脱離イオン収量や脱離イオン種が大きくことなることがわかった。陽電子消滅の場合、 $O^+$ イオンの脱離収率は電子衝撃よりも1桁以上高い効率で脱離が起こることがわかった。

水導入機構を製作して、水が吸着した二酸化チタン表面上における陽電子刺激脱離の観測をおこなった。また、同一試料において電子衝撃脱離の測定もおこなった。その結果、電子衝撃脱離の場合には表面に吸着した水に由来する水素イオンや水酸基イオンの信号が増えたのに対して、陽電子刺激脱離では清浄表面と同様に酸素イオンの脱離が主体であることが明らかになった。この結果は、陽電子消滅によるサイト選択的な脱離を反映していると考えられる。固体中に入射した陽電子は、固体内で拡散しながら自身が好むサイトを探し出し、そこに局在して対消滅するという性質をもつ。二酸化チタン内においては、陽電子はチタン原子周辺よりも酸素原子周辺に陽電子が集まるという理論計算結果が報告されている。つまり、陽電子消滅による酸素イオンの脱離は、二酸化チタン表面のチタン原子よりも酸素原子の内殻電子消滅によって起こることが推測できる。一方、電子衝撃で観測される水素イオンは、水分子がチタン原子上に解離吸着して形成した水酸基から脱離する。つまり、陽電子はチタン原子やその上に吸着した水酸基の電子と消滅する確率が小さいためにサイト選択的な脱離が起こると結論できる。

陽電子が対消滅する際に放出する消滅ガンマ線のエネルギースペクトルを高いエネルギー分解能をもつゲルマニウム検出を用いて測定し、その入射エネルギー依存性を調べた。入射エネルギーに対する脱離イオン収率と消滅ガンマ線スペクトルから求めたSパラメータの変化に相関があることがわかり、提唱した陽電子消滅誘起脱離のモデルと矛盾しないという結果を得た。

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計7件)

1. “Efficient and surface site-selective ion desorption by positron annihilation”  
T. Tachibana, M. Yamashita, M. Nagira, A. Yabuki, and Y. Nagashima  
Sci. Rep. **8**, (2018) 7197-1-7. DOI: 10.1038/s41598-018-25506-5
2. “Experimental and computational studies of positron-stimulated ion desorption from 二酸化チタン(110) surface”  
T. Yamashita, S. Hagiwara, T. Tachibana, K. Watanabe, and Y. Nagashima,  
Mater. Res. Express, **4**, (2017) 116303-1-3

DOI: 10.1088/2053-1591/aa9454

3. “陽電子消滅誘起イオン脱離”  
立花隆行, 長嶋泰之  
原子衝突学会誌しょうとつ:シリーズ「陽電子が拓く物質の科学」,  
14 (2017) 44-50.
4. “Observation of a Low Energy Component of Positronium Emitted from Alkali-Metal Coated Polycrystalline Tungsten Surfaces”  
Shimpei Iida, Hiroki Terabe, Takayuki Tachibana, Ken Wada, Izumi Mochizuki, Akira Yagishita, Toshio Hyodo, Yasuyuki Nagashima  
Def. Diff. Forum, **373** (2016) 309-312.  
DOI: 10.4028/www.scientific.net/DDF.373.309
5. “Ion desorption from 二酸化チタン (110) by low energy positron impact”  
Takayuki Tachibana, Luca Chiari, Masaru Nagira, Takato Hirayama, and Yasuyuki Nagashima,  
Def. Diff. Forum, **373** (2016) 324-327.  
DOI: 10.4028/www.scientific.net/DDF.373.324
6. “Emission of low-energy positronium from alkali-metal coated single-crystal tungsten surfaces”  
S. Iida, K. Wada, I. Mochizuki, T. Tachibana, T. Yamashita, T. Hyodo and Y. Nagashima,  
J. Phys. Cond. Matt., **28** (2016) 475002-1-4.  
DOI: 10.1088/0953-8984/28/47/475002

[学会発表](計8件)

1. “陽電子入射による LiF 表面からの分子イオン脱離”  
立花隆行,  
京都大学 宇治キャンパス, 原子衝突学会第 43 回年会 2018 年 10 月 12 日-14 日, H3
2. “LiF 表面における陽電子刺激イオン脱離”  
立花隆行, 星大樹, Randall Gladen, 長嶋泰之  
第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2018 年 7 月 4 日-7 月 6 日  
東京大学弥生講堂
3. “二成分密度汎関数法によるルチル型二酸化チタン表面の陽電子状態の研究”  
萩原聡, 山下貴志, 立花隆行, 長嶋泰之, 渡辺一之  
日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17 日- 3 月 20 日,  
大阪大学豊中キャンパス, 20aD42-6
4. “二酸化チタン(110)表面における陽電子刺激イオン脱離と表面捕獲陽電子”  
山下貴志, 立花隆行, Luca Chiari, 柳楽勝, 矢吹壽国, 萩原聡,  
渡辺一之, 平山孝人, 長嶋泰之  
日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17 日- 3 月 20 日,  
大阪大学豊中キャンパス, 18pC43-7
5. “二酸化チタン(110)表面からの陽電子刺激イオン脱離と電子刺激イオン脱離の比較”  
山下貴志, 立花隆行, 柳楽勝, 矢吹壽国, Luca Chiari, 平山孝人, 長嶋泰之  
原子衝突学会第 41 回年会, 2016 年 12 月 10 日~12 月 11 日,  
富山大学五福キャンパス, P62
6. “二酸化チタン表面における陽電子刺激イオン脱離収率と S-parameter の入射エネルギー依存性”  
山下貴志, 立花隆行, ルカ・チアリ, 柳楽勝, 矢吹壽国, 平山孝人, 長嶋泰之  
平成 28 年度京都大学原子炉実験所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」,  
2016 年 12 月 8 日-9 日, 京都大学原子炉実験所
7. “二酸化チタン(110) および H<sub>2</sub>O/二酸化チタン表面上における陽電子刺激イオン脱

離”

立花隆行, 山下貴志, 柳楽勝, 矢吹壽国, Luca Chiari, 平山孝人, 長嶋泰之  
日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 21 日-24 日,  
金沢大学角間キャンパス, 15aKK-5

8. “二酸化チタン(110)表面における陽電子刺激イオン脱離収量と S-parameter の比較”  
山下貴志, 立花隆行, 柳楽勝, 矢吹壽国, 平山孝人, 長嶋泰之  
日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 21 日-24 日,  
金沢大学角間キャンパス, 14pBC-7

〔図書〕(計 1 件)

1. “Compendium of Surface and Interface Analysis, Chapter:  
Positron-annihilation-induced desorption” Edited by The Surface Science  
Society of Japan (2018)  
T. Tachibana, Y. Nagashima  
DOI: 10.1007/978-981-10-6156-1

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年:  
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年:  
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名:

職名:

研究者番号(8桁):

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名:

ローマ字氏名:

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。