

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2009

課題番号：19540349

研究課題名 (和文) 全反射陽電子による電子励起を利用した表面超構造の電子状態の研究

研究課題名 (英文) Study of electronic state associated with surface super-structures through electron excitations by totally reflected positrons

研究代表者

河裾 厚男 (KAWASUSO ATSUO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：20354946

研究成果の概要 (和文)：高速陽電子 (10～20keV) を物質表面に低角入射させた場合に起こる全反射過程において、表面素励起によるエネルギー損失過程を解明するために、エネルギー分析型の反射高速陽電子回折装置を開発した。障壁電極の仕様及び配置を最適化することで、電子集団振動 (プラズモン) 励起を観測する上で十分な分解能 (4eV) を達成した。この分析装置を用いることで、Si (111)-7x7 再構成表面、Al (111) 表面、及び、Bi (001) 表面について、全反射陽電子による表面プラズモンの多重励起効果の観測に初めて成功した。電子ビームによる同様の実験との比較から、全反射陽電子は電子の約2倍の表面プラズモンを励起することを見出した。陽電子が電子の2倍の表面プラズモンを励起する点については、それらの回折経路の違いによって説明できることが分かった。即ち、電子の場合、内部に進入した後に真空外に離脱するのに対して、陽電子は内部に進入することなく表面第一層をチャンネルして真空外に離脱する。このため陽電子は、電子よりも多くの表面プラズモンを励起することができる。また、全反射陽電子のビームスポットの空間広がりや反射率の絶対値が、上の表面プラズモンの多重励起効果により矛盾なく説明できることが明らかになった。低温で金属絶縁体転移を起こす Si (111)/In 超構造表面について、金属状態と絶縁体状態での全反射陽電子のエネルギー損失スペクトルを観測した。極低エネルギー領域に変化が認められたが、さらに詳しい解析のためには、エネルギー分解能の向上が必要であることが明らかになった。

研究成果の概要 (英文)：To study the energy loss processes of positrons at solid surfaces under the total reflection condition at small enough glancing angles, we developed an energy-filtered reflection high-energy positron diffraction apparatus. By optimizing the configuration of retarding electrodes, we achieved an energy resolution of 4 eV which is adequate to observe surface plasmon excitation. Consequently, we first succeeded in observing the multiple surface plasmon excitation processes for Si (111)-7x7, Al (111) and Bi (001) surfaces. Comparing the case of electron diffraction, it was found that the mean excitation number of surface plasmon by positrons is two times greater than that by electrons. This difference between positrons and electrons is originating from their different diffraction passes. That is, until the eventual escaping to the vacuum, electrons penetrate into the bulk, while positrons channel in the first surface layer. Hence, positrons excite more surface plasmons than electrons. The broadening of reflected beam profile and the degradation of absolute reflectivity of positrons under the total reflection condition could be explained considering the multiple surface plasmon excitations. We also observed the energy loss process of positrons with the Si (111)/In surface exhibiting the metal-insulator transition at low temperatures. Although a small modulation in the energy loss spectra were observed accompanying the phase transition, an improvement of the energy resolution is still needed for the detailed study.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	2,500,000	750,000	3,250,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：表面・界面、陽電子線

1. 研究開始当初の背景

本研究課題の基礎となっている反射高速「陽電子」回折は、反射高速「電子」回折において電子を陽電子で置き換えたものである。陽電子の物質最表面での全反射を利用することが、その最大の特徴である。研究代表者等は、1998年に本手法を実証し、その後、装置を改良しつつ、各種の表面超構造の研究を続け、電子回折よりも高い精度で最表面構造が決定できることを明らかにしている。一方で、高速陽電子と物質最表面の相互作用のうち、特に非弾性相互作用が全く調べられていないため、構造解析のパラメータの中で吸収項の取扱いが不十分であるという問題点があった。また、全反射陽電子の反射率は、理想的には100%となるはずであるが、実測データは存在していなかった。全反射陽電子の回折過程を明らかにするためには、そのエネルギー損失過程を知る必要性があった。また、高速陽電子のエネルギー損失過程が明らかになれば、逆に、これを使って最表面電子状態の研究の端緒が拓かれると期待された。

2. 研究の目的

本研究では、エネルギー分析型反射高速陽電子回折法 (ER-RHEPD) を開発することで、高速陽電子の物質表面における全反射回折に伴うエネルギー損失過程を解明すること、及び、これにより陽電子を用いた表面電子状態の研究に先鞭をつけることである。

3. 研究の方法

障壁型のエネルギー分析器を作製する。この際、十分なエネルギー分解能が得られるように、電極配置を最適化する。Si(111)-7×7再構成表面、Al(111)表面、Bi(001)表面について、全反射陽電子のエネルギー損失スペク

SIMIONによる陽電子ビームの軌道シミュレーション

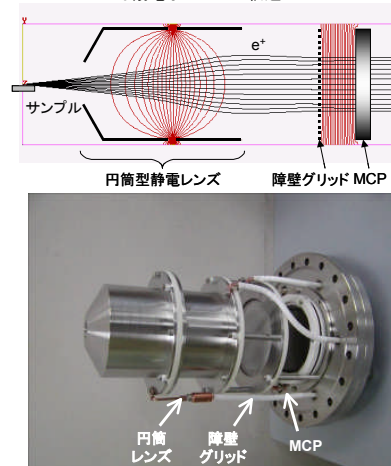


図1 製作したエネルギー分析器の構成・ビーム軌道シミュレーション、及び、外観写真。

トルを測定する。全反射回折を起こさない電子についても、同様の実験を行い、両者を比較検討する。Si(111)-7×7再構成表面については、全反射陽電子の絶対反射率と鏡面反射スポットプロファイルを測定し、上で得たエネルギー損失過程の影響を評価する。低温で金属絶縁体転移を起こすSi(111)/In表面について、相転移前後での全反射陽電子のエネルギー損失スペクトルを測定し、電子状態の変化が陽電子エネルギー損失過程に与える影響を調べる。

4. 研究成果

図1は、本研究で開発したエネルギー分析器の構成図と写真を示している。本装置は円筒型静電レンズ、障壁電極 (グリッド)、蛍光面付マイクロチャンネルプレート (MCP)、及び、電源系統から構成されている。試料表面で全反射した陽電子は、静電レンズにより

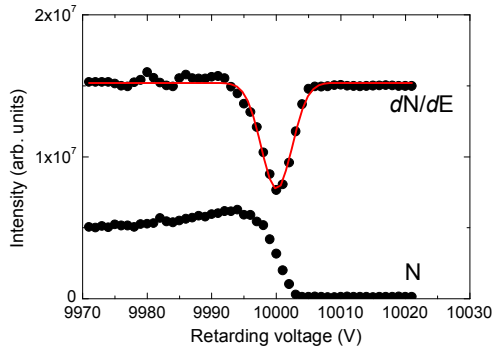


図2 エネルギー分析器を用いたビーム透過量の障壁電位依存性。

軌道が修正され、障壁電極に垂直に入射させられる。障壁電極は1枚であり、MCP入射面は接地電位となっている。障壁電極として使用するグリッドの開孔率と電極間距離を最適化した結果、入射ビームに対して図2のNに示すような透過率曲線が得られた。この微分曲線(dN/dE)の半値幅から、4eVというエネルギー分解能を得た。これは、従来、電子回折用に開発されたエネルギー分析器と同等の性能である。

図3は、本装置により得られたSi(111)-7×7再構成表面からの全反射陽電子のエネルギー損失スペクトルの全容である。横軸は損失エネルギーに換算してある。損失エネルギーが3~10keVの範囲では、全反射陽電子強度はほぼ一定である。これは、3keV以上のエネルギー損失確率が非常に小さいことを示している。損失エネルギーが3keV以下になると全反射陽電子強度は減少し始める。これは、内殻電子励起が起こり始めることに相当している。特に、100eVと150eVの位置には、L殻電子の励起に起因する損失過程が観測された。損失エネルギーが100eV以下のときは、全反射陽電子強度は急激に減少する。これは、集団電子励起(プラズモン励起)とエネルギー損失を伴わない弾性散乱(ゼロロス)に相当する。

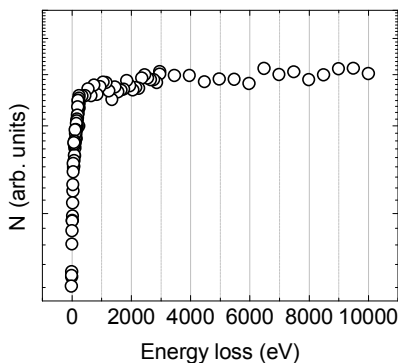


図3 Si(111)-7×7表面について得られた陽電子エネルギー損失スペクトル(積分値)。ビームエネルギーは10keVである。

図4(a)は、損失エネルギー0~70eVの全反

射陽電子強度を差分スペクトルで表示したものである。これより明らかなように、約10eVの間隔でエネルギー損失が起っている。これは、全反射陽電子による表面プラズモンの多重励起を示している。図4(b)は、同様にして得た高速電子のエネルギー損失スペクトルである。陽電子の場合、2~3回の表面プラズモン励起ピーク(20eV及び30eVの位置の)ピークが強く、弾性散乱ピーク(0eVのピーク)は相対的に弱い。一方電子の場合は、1~2回の表面プラズモン励起ピークが強く、弾性散乱ピークも同程度である。得られたエネルギー損失スペクトルをポアソン分布に従い解析した結果、表面プラズモン励起の平均励起回数は、全反射陽電子の場合2.6回、高速電子の場合1.4回となった。即ち、全反射陽電子は電子の2倍近くの表面プラズモンを励起する。

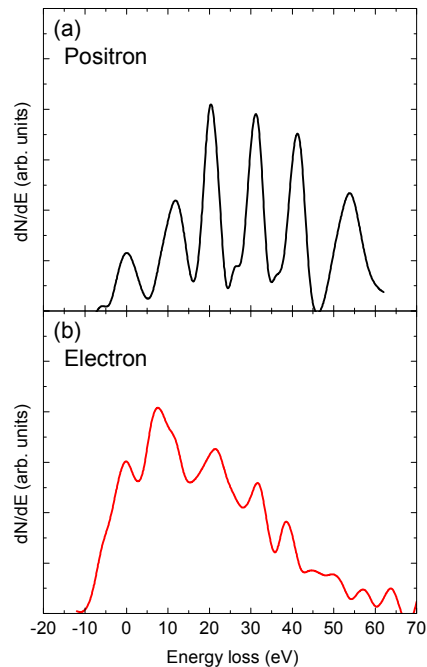


図4 Si(111)-7×7表面について得られた(a)陽電子、(b)電子のエネルギー損失スペクトル(微分値)。ビームエネルギーは10keVである。

図5(a)及至(d)は、Al(111)表面とBi(001)表面について得られた全反射陽電子及び反射電子のエネルギー損失スペクトルである。これらより、Si(111)-7×7表面と同様に、表面プラズモンの多重励起が起こること、及び、全反射条件での陽電子の表面プラズモンの平均励起回数が、電子のそれよりも2倍程度多いことが明らかになった。

全反射陽電子と反射電子で、表面プラズモンの励起回数が異なる点は、それらの回折経路の違いに起因していると考えられる。即ち、全反射陽電子は物質内部に進入することなく、表面第一層をチャンネルングして真空外

に離脱していくのに対して、反射電子は物質内に入射して多重反射を繰り返した後に真空外に離脱する。このため、全反射陽電子の方が多くの表面プラズモンを励起する。表面プラズモンの平均励起回数 n は、相互作用の距離 t とプラズモン励起の平均自由行程 l の商 ($n=t/l$) で与えられる。例えば Si の場合、 $l=180\text{\AA}$ であることが知られているので、全反射陽電子と Si の相互作用距離は $t=460\text{\AA}$ 程度となる。反射電子では、 $t=250\text{\AA}$ 程度となる。真空外から表面に接近するときの軌跡、及び、表面から真空外に離脱した後の軌跡は、陽電子と電子で大きな違いはないと考えられる。反射電子について得られた相互作用距離 $t=250\text{\AA}$ は、真空外にある電子または陽電子が表面プラズモンを励起する相互作用距離と見なせる。全反射陽電子と反射電子の相互作用距離の差 (約 190\AA) は、全反射陽電子が表面層をチャンネルする距離に相当すると考えられる。実際これは、弾性散乱の平均自由行程と良く一致している。

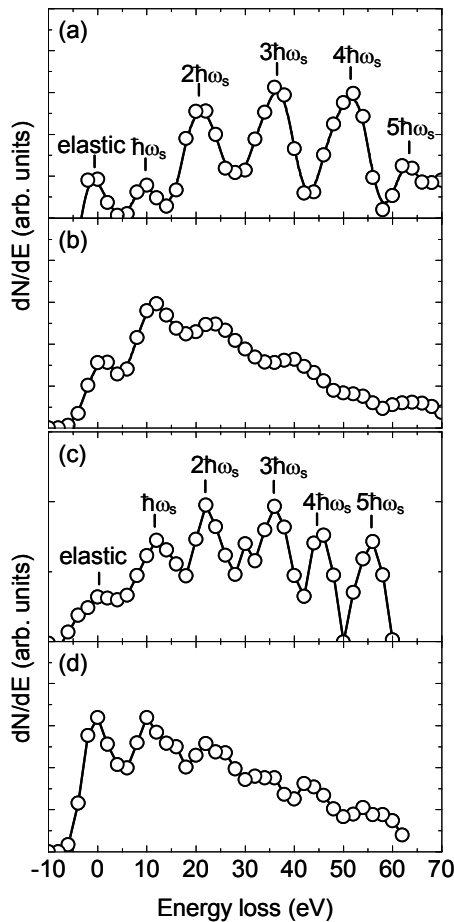


図 5 Al(111)表面の陽電子(a)、及び、電子(b)のエネルギー損失スペクトル(微分値)。Bi(001)表面の陽電子(a)陽電子、及び、電子(b)のエネルギー損失スペクトル(微分値)。ビームエネルギーは 10keV である。

表面プラズモンの多重励起は、全反射陽電

子の絶対反射率と回折スポットプロファイルに影響を及ぼすものと考えられる。そこで、本研究では、これらについても調べた。図 6 は、Si(111)- 7×7 再構成表面による陽電子及び電子の絶対反射率の入射視射角依存性 (θ) を示している。 $\theta < 2.0^\circ$ が陽電子の全反射領域である。もし、表面が完全に平坦で、エネルギー損失が起これなければ、図中の黒の実線で示すように、全反射陽電子強度は 100% になるはずである。しかし、実測値は 80% 以下であり、しかも 7×7 再構成表面を仮定した計算値よりも低い。これは、全反射陽電子がエネルギーを損失することで、散漫散乱していることを意味している。実際、表面フォノンと表面プラズモン励起を加味することで、実測値が良く説明できることが分かる。この結果は、表面プラズモンの多重励起の結果と無矛盾である。

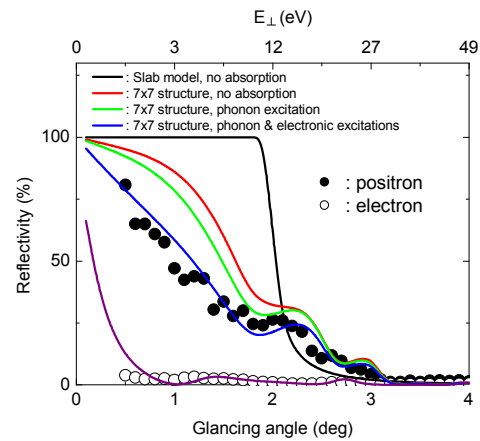


図 6 Si(111)- 7×7 表面の陽電子(●)、及び、電子(○)の絶対反射率の入射視射角依存性。ビームエネルギーは 10keV である。黒線、赤線、緑線、青線は、ステップポテンシャルとエネルギー損失ゼロ、 7×7 構造とエネルギー損失ゼロ、 7×7 構造とフォノン励起、 7×7 構造とフォノン及び電子励起を夫々仮定したときの陽電子反射率の理論値である。紫線は 7×7 構造とフォノン及び電子励起を仮定した電子反射率の理論値である。

図 7(a) は、全反射陽電子の鏡面反射点のスポットプロファイルである。但し、畳み込まれた入射ビームのプロファイルを逆畳込み操作により排除している (入射ビームの拡がりはゼロと見なせる)。中心部分の鋭いプロファイルに、広がったプロファイルが重畳しているように見える。全反射陽電子が表面プラズモンを励起する場合、鏡面反射点のスポットプロファイルは、理論的には、その励起回数に応じて図 7(b) のようになる。上で得られた表面プラズモンの平均励起回数とポアソン分布に従う励起スペクトルを想定すると、図 7(a) の赤の実線で示すように、実測を良く再現するスポットプロファイルが得られる。即ち、全反射陽電子の鏡面反射点のスポットプロファイルは、表面プラズモンの多重励起

効果を考慮することで説明できる。

上述したように、本研究で開発したエネルギー分析器を用いることで、全反射陽電子による表面プラズモンの多重励起が実験的に初めて確認された。全反射陽電子が、反射電子の2倍程度の表面プラズモンを励起する点は、両者の回折経路の違い起因する普遍的な現象である。さらに、全反射陽電子の絶対反射率の理想強度からのずれ、回折スポットの拡がり、表面プラズモンの多重励起効果であることも初めて解明された。なお、個別電子励起やフォノン励起を解明するためには、分析装置のさらなる高分解能化が必要である。

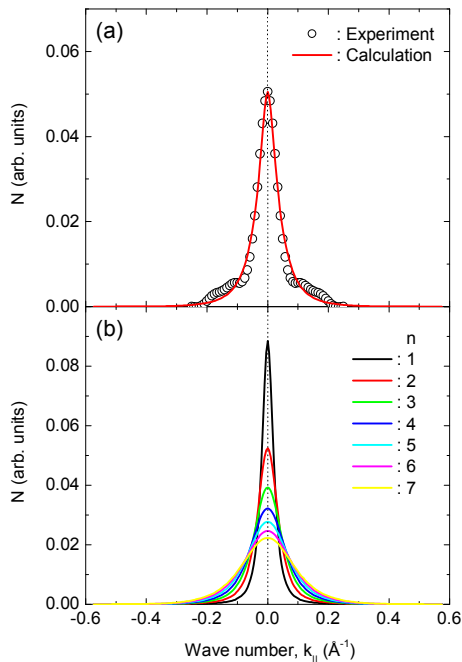


図 7 (a)Si(111)-7x7 表面について得られた全反射陽電子の鏡面反射点のスポットプロファイル。但し、入射スポットによる逆畳込み操作を施している。ビームエネルギーが10keVである。赤線は実験で得られた表面プラズモンの平均励起回数、ポアソン分布に従う励起スペクトル、及び、(b)図に示す理論的なスポット拡がり considering 計算されるスポットプロファイル。(b) n 回の表面プラズモンが励起されたときの理論的な鏡面反射点の拡がり。但し、入射スポットの拡がりはないものとしている。

本研究では、さらに、低温でパイエルズ不安定性に起因した金属絶縁体転移を起こす Si(111)-In 擬1次元原子鎖構造に着目して、全反射陽電子のエネルギー損失スペクトルを測定した。この系では、低温において電荷密度波が形成され、バンドギャップが発現するため、プラズモン励起スペクトルのエネルギー間隔が増大すると期待される。また、バンドギャップの分だけ個別電子励起エネルギーが増大すると考えられる。室温のエネルギー損失スペクトルから、プラズモン励起エネルギーは約9eVであり、平均

励起回数は約3回であった。他方、70Kでエネルギー損失スペクトルを測定したところ、プラズモン励起エネルギーが僅ではあるが増大し、低エネルギー領域に表面プラズモン以外の損失ピークが発現することが見出された。今後、これらの変化をさらに詳細に調べるためには、測定装置のエネルギー分解能を絶縁相のバンドギャップと同程度(0.3eV程度)まで向上することが必要である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計5件)

- ① Y. Fukaya, A. Kawasuso, A. Ichimiya, "Inelastic scattering processes in reflection high-energy positron diffraction from a Si(111)-7x7 surface, 査読有, Phys. Rev. B79 (2009)193310-193313.
- ② Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya, Surface plasmon excitation at topmost surface in reflection high-energy positron diffraction, 査読有, e-J. Surf. Sci. Nanotech. 8 (2010) 190-193.
- ③ Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya, Surface plasmon excitation at metal surface studied by reflection high-energy positron diffraction, 査読有, J. Phys. Conf. Ser. In press.
- ④ Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya, Positron Energy Loss Spectroscopy in Reflection High-Energy Positron Diffraction 査読有, JAEA Review 2008-055 (2008)154.
- ⑤ Y. Fukaya, A. Kawasuso and A. Ichimiya, Surface plasmon excitations from Al(111)-1x1 surface studied by reflection high-energy positron diffraction, 査読有, JAEA-Review 2009-041 (2010)145.

[学会発表] (計18件)

- ① 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“エネルギー分析型反射高速要電子回折を用いた結晶表面における非弾性散乱過程の研究”、第44回放射線・アイソトープ研究発表会、平成19年7月5日、日本青年会館
- ② 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折におけるエネルギー損失過程の研究”、日本物理学会第62回年会年次大会、平成19年9月22日、北海道大学
- ③ 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折におけるエネルギー損失分光”、京都大学原子炉実験所専

- 門研究会、平成 19 年 11 月 2 日、京都大学
- ④ 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折におけるエネルギー分析スペクトルの測定”、第 27 回表面科学講演大会、平成 19 年 11 月 17 日、京都大学原子炉実験所
- ⑤ 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折における非弾性散乱過程の研究”、日本物理学会第 63 回年次大会、平成 20 年 3 月 26 日、近畿大学
- ⑥ A. Kawasuso, Y. Fukaya, M. Hashimoto, A. Ichimiya, H. Narita and I Matsuda, “Atomic Scale Study of Surface Structures and Phase Transition with Reflection High-Energy Positron Diffraction(Invited)”, 9th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (PPC9), May 11-15, 2008, Wuhan, China.
- ⑦ 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“エネルギー分析型反射高速陽電子回折によるエネルギー損失スペクトル測定”、第 45 回アイソトープ・放射線研究発表会、平成 20 年 7 月 3 日、日本青年館
- ⑧ 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折におけるエネルギー損失スペクトル測定”、日本物理学会 2008 年秋季大会、平成 20 年 9 月 23 日、岩手大学
- ⑨ 深谷有喜、橋本美絵、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折における陽電子エネルギー損失分光の研究”、第 3 回高崎量子応用研究シンポジウム、平成 20 年 10 月 9 日、高崎シティギャラリー
- ⑩ 深谷有喜、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折における陽電子エネルギー損失スペクトル”、第 28 回表面科学学術講演会、平成 20 年 11 月 15 日、早稲田大学
- ⑪ 深谷有喜、河裾厚男、一宮彪彦、“エネルギー分析型反射高速陽電子回折を用いた結晶最表面からのエネルギー損失スペクトルの測定”、平成 20 年 12 月 5 日、京都大学原子炉実験所
- ⑫ Y. Fukaya, M. Hashimoto, A. Kawasuso, A. Ichimiya, “Positron Energy Loss Spectrum in Reflection High-Energy Positron Diffraction”, 5th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, November 10, 2008, Waseda University
- ⑬ 深谷有喜、河裾厚男、一宮彪彦、“反
- 射高速陽電子回折を用いた結晶表面における非弾性散乱過程の研究”、第 46 回アイソトープ・放射線研究発表会、平成 21 年 7 月 2 日、科学未来館
- ⑭ 深谷有喜、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折による Al(111)-1x1 表面における表面プラズモン励起の研究”、第 4 回高崎量子応用研究シンポジウム、平成 21 年 10 月 9 日、高崎シティギャラリー
- ⑮ 深谷有喜、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折を用いた金属薄膜表面における表面プラズモン励起の研究”、第 29 回表面科学学術講演会、平成 21 年 10 月 29 日、タワーホール船堀
- ⑯ 深谷有喜、河裾厚男、一宮彪彦、“反射高速陽電子回折を用いた金属表面における表面プラズモン励起過程の研究”、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」、平成 21 年 11 月 21 日、京都大学原子炉実験所
- ⑰ Y. Fukaya, A. Kawasuso, A. Ichimiya, “Surface plasmon excitation at metal surface studied by reflection high-energy positron diffraction”, Advanced Science Research Symposium 2009, November, 11, 2009, Tokai
- ⑱ Y. Fukaya, A. Kawasuso, A. Ichimiya, “Surface plasmon excitation at topmost surface in reflection high-energy positron diffraction”, 7th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '09, December, 6, 2009, Hawaii

6. 研究組織

(1) 研究代表者

河裾 厚男 (KAWASUSO ATSUO)
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・研究主幹
 研究者番号：20354946

(2) 研究分担者

深谷 有喜 (FUKAYA YUKI)
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・研究員
 研究者番号：40370465

(3) 連携研究者

橋本 美絵 (HASHIMOTO MIE)
 独立行政法人日本原子力研究開発機構・研究員
 研究者番号：80435595