

高輝度・高強度陽電子ビーム回折法の開発と表面研究への応用

Development of High-brightness and High-intensity  
Positron Diffraction and its Application to Surface  
Studies

課題番号：24221007

兵頭 俊夫 (HYODO TOSHIO)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・特定教授



研究の概要

陽電子（電子の反粒子）を用いた回折実験は、表面感度が非常に高いが、ビーム強度が弱いという難点があった。本研究課題ではKEK 物質研の高輝度・高強度低速陽電子ビームを用いてこれを克服し、全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) と低速陽電子回折 (LEPD) の実用的装置を開発する。これらを用いて、他の手段では難しかったさまざまな結晶表面の構造（原子配置）を決定する。

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：陽電子回折、TRHEPD、LEPD、表面構造、シリセン、グラフェン、触媒

1. 研究開始当初の背景

電子の反粒子である陽電子を用いた回折実験は、(1)理論的扱いが単純である、(2)表面感度が高い、(3)散乱因子がX線のようなめらかである、等の特徴がある。このため、固体表面の高信頼度の構造解析が可能である。しかし反粒子を高強度で得ることは難しく、従来の研究の強度では本来期待される成果が出ず、高輝度・高強度の陽電子ビームによる陽電子回折法の開発が求められていた。

2. 研究の目的

二種の陽電子回折法である全反射高速陽電子回折 (TRHEPD, total-reflection high-energy positron diffraction) と低速陽電子回折 (LEPD, low-energy positron diffraction) の実用的装置を開発し、固体表面の研究に応用して、これまで確定していなかったさまざまな結晶表面の構造（原子配置）を決定する。さらに発展的課題として、表面原子位置の直接決定による表面構造解析手法も開発する。

3. 研究の方法

これまででない高輝度・高強度の陽電子ビームを得るために、KEK 物質構造科学研究所の高強度低速陽電子ビームを高輝度化して利用する。高輝度化には陽電子独特の方法である Ni または W の薄膜を用いた透過型輝度増強法を用いる。TRHEPD ステーションと LEPD ステーションを製作し、電子回折

法では困難とされる表面の構造解析を行う。また、TRHEPD パターンをパターンソート関数で解析する方法と、LEED パターンを測定し逆変換で原子像を求める陽電子ホログラフィ法によって、表面原子配置の構造モデルを仮定しない直接決定を試みる。

4. これまでの成果

[1] 高輝度・高強度低速陽電子ビームの生成

KEK 低速陽電子実験施設の陽電子ビームの輝度を生成直後の約 1000 倍に増強した。これは放射性同位元素を用いたビームに比べると 60 倍の輝度増強である。これにより陽電子ビームでの試料方位調整がリアルタイムでモニタを見ながら行えるようになり、表面超構造の分数次の回折スポットもよく観測できるようになった。測定時間も大幅に短縮できた。データの質も飛躍的によくなったので、陽電子の全反射を強調して、反射高速陽電子回折 (RHEPD) を全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) と改称した。

[2] 表面超高感度の実証

Si(111)-(7×7)再構成表面を利用して、TRHEPD が最表面原子配置に非常に敏感で、次のような優れた特徴をもつことが明らかにした。(1) 固体内部で陽電子のポテンシャルエネルギーが正のため、臨界視射角  $\theta_c$  以下で入射した陽電子は全反射され、回折パターンは最表面だけの情報を伝える。(2) 陽電子は全反射領域とブラッグ反射領域が十分重なる唯一の粒子である。(3)  $\theta_c$  より大きな視

射角で入射すると、最表面直下の構造にも敏感になり、視射角を変えて測定すれば、望む深さまでの情報が得られる。

### [3] シリセンおよびグラフェン

C 原子や Si 原子の単層膜であるグラフェンやシリセンは、基礎科学的な興味および高速電子デバイスへの応用への期待から広く研究されている。Ag(111)表面上のシリセンについて、TRHEPD の回折パターン(0, 0)スポット強度のロッキング曲線を測定し、バックリング(凸凹)の大きさ、吸着高さ(下層の Si 原子と基板の銀原子との距離)、Si-Si 結合間の角度を、実験的に初めて求めた。結果は理論の予想と一致した。続いて、金属表面上のグラフェンについて、バックリングの有無や吸着高さを決定することを開始した。

### [4] 半導体表面上の貴金属ナノワイヤ構造

半導体表面に貴金属を蒸着すると、ナノワイヤといわれる一次元構造ができることがある。Ge(001)-(8×2)-Au ナノワイヤ構造は、10 年ほど前に発見されたが、未だに詳細が確定していない。(0,0)スポットのロッキング曲線を用いて、その原子配置の解析を開始している。ナノワイヤ構造は1次元系特有の新規な電子物性が発現することがあり、表面物性の解明に興味を持たれている。そのためには原子配置の決定が必須であり、TRHEPD への期待は大きい。

### [5] 酸化チタン

二酸化チタン(TiO<sub>2</sub>)は、光触媒機能をはじめさまざまな触媒機能を生かして広く用いられている。しかし、たとえばルチル型 TiO<sub>2</sub>(110)-(1×1)面を超高真空中で熱処理して得られるルチル型 TiO<sub>2</sub>(110)-(1×2)表面は、30 年来、表面原子配置の詳細がわかっていない。我々はこの表面の解析に挑戦している。予備的な結果であるが、20 年以上前にて提案された Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(*iv*)モデルが TRHEPD のデータを最も良く説明できることが明らかになった。特に、他の手法では区別ができなかったとされていた、最表面の酸素原子の有無の判別、および配置の位相の異なる Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(*iv*)と Ti<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(*ih*)構造の区別が容易に区別できており特筆に値する。

### [6] まとめ

陽電子回折が表面の構造(原子配置)に極めて敏感であることを証明し、確定されていなかったさまざまな結晶表面に適用している。そのインパクトは大きく、今後陽電子回折は、表面構造解析の決定的手法として、3次元結晶の構造解析でX線回折が担っているような役割を担うようになるであろうと期待される。

## 5. 今後の計画

TRHEPD では、巨大ラッシュバ効果を発現する重元素が吸着した金属表面の構造解析を行い、原子位置と表面電子状態のスピン分

裂幅との関連性を明らかにする。また、パターン関数解析法を用いて、実験結果からの直接的な最表面原子配置導出法の開発を試みる。

LEPD では、装置を完成させ、それを用いて先ず回折パターンの観測を行う。回折強度と入射陽電子エネルギーの関係である I-V 曲線を測定するシステムを構築し、トポロジカル絶縁体の表面構造と表面状態の関係を明らかにする。また、陽電子ホログラフィ法の開発を行う。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

- “KEK 低速陽電子実験施設の現状と最近の研究”, 和田健, 陽電子科学, **3**, 11-18, (2014)
- “Brightness enhancement of a linac-based intense positron beam for total-reflection high-energy positron diffraction (TRHEPD)”, M. Maekawa 他, Eur. Phys. J. D, **68**, 165-1-6 (2014)
- “Total reflection high-energy positron diffraction (TRHEPD)”, T. Hyodo 他, J. Phys.: Conf. Ser. **505**, 012001-1-6 (2014)
- “Reflection high-energy positron diffraction study on the first surface layer”, Y. Fukaya 他, J. Phys. Conf. Ser. **505**, 012005-1-6 (2014)
- “Total reflection high-energy positron diffraction: An ideal diffraction technique for surface structure analysis”, Y. Fukaya 他, Appl. Phys. Express, **7**, 056601-1-4 (2014)
- “反射高速陽電子回折(RHEPD)による表面構造解析-Si(111)- $\sqrt{21}\times\sqrt{21}$  超構造を例に”, 深谷有喜, 陽電子科学, **2**, 29-34 (2014)
- “Structure of silicene on a Ag(111) surface studied by reflection high-energy positron diffraction”, Y. Fukaya 他, Phys. Rev. B **88**, 205413-1-4, (2013)
- “Reflection high-energy positron diffraction: past and future 15 years”, Y. Fukaya 他, J. Phys.: Conf. Ser. **443**, 012068-1-6 (2013)
- “New experiment stations at KEK Slow Positron Facility”, K. Wada 他, J. Phys.: Conf. Ser. **443**, 012082-1-6 (2013)

ホームページ等

低速陽電子実験施設(SPF)ホームページ

<http://pfwww.kek.jp/slowpos/>