

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：32686

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23750023

研究課題名（和文） 電子 - 陽電子対消滅誘起イオン化脱離法の開発

研究課題名（英文） Positron-electron annihilation induced ion desorption

研究代表者

立花 隆行 (TACHIBANA TAKAYUKI)

立教大学・理学部・助教

研究者番号：90449306

研究成果の概要（和文）：低速の陽電子入射によってTiO₂(110)表面から脱離するイオンの観測をおこなった。脱離イオンと消滅γ線との同時計測法による飛行時間分析法を開発し、O⁺イオンが脱離することを明らかにした。さらに入射エネルギー依存性から、電子衝撃による脱離しきい値エネルギーよりも十分に低い入射エネルギーでもイオンの脱離が起こることを示した。解析結果から、陽電子がTiO₂の内殻電子と対消滅をした結果、イオンの脱離が誘起されることがわかった。

研究成果の概要（英文）：Positron-stimulated desorption of ions from a TiO₂(110) surface has been investigated. Desorbed O⁺ ions were detected in coincidence with the emission of annihilation γ-rays. The energy dependence of the ion yields shows that the O⁺ ions were detected at much lower energies than the previously reported threshold energy for electron impact desorption corresponding to the excitation energy of Ti (3p) core electrons. These results provide strong evidence that core-hole creation by positron annihilation with electrons in the TiO₂ core levels leads to the desorption of O⁺ ions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：電子遷移誘起脱離

1. 研究開始当初の背景

電子の反粒子である陽電子は、電子との対消滅とそれに伴うγ線の放出など、ほかの粒子にはない性質を持ち、電子構造や格子欠陥など材料の物性を評価するプローブとして用いられてきた。特に最近では、低速陽電子ビームが表面第一層目に高い感度

を持つプローブとなることから、表面物性研究への利用が広まってきている。

陽電子の対消滅の相手となるのは、伝導電子や価電子である割合が高いが、内殻電子とも対消滅を起こす。この結果、対消滅後には、1電子励起・イオン化や内殻正孔生成からオージェ崩壊を経由した多電子励起・イオン化など、表面原子・分子内に多

様な状態が形成されることになる。このような表面励起・イオン化状態の緩和過程の際には、表面原子・分子の解離や脱離、あるいは合成を伴う非熱的反応が起こりうる。しかしながら、これまでに対消滅自体が試料に及ぼす影響についてはほとんど理解がされていない。

2. 研究の目的

固体表面に低速の電子線や光子が入射したとき、表面を構成する原子や分子、あるいはイオンが真空中に脱離することがある。この現象は電子遷移誘起脱離 (DIET: Desorption Induced by Electronic Transitions) と呼ばれ、表面の電子的励起が緩和に至るまでの動的過程の理解を目的として、そのメカニズムの解明が進められてきた。

一方、低速陽電子が固体に入射すると、陽電子と表面原子の電子との対消滅に特有の DIET が引き起こされる可能性がある。本研究では、低速の陽電子ビームを $\text{TiO}_2(110)$ 表面に入射し、飛行時間法を用いて試料表面から脱離するイオンを観測するための装置を開発し、その脱離機構の詳細を明らかにすることを目的とした。これにより、陽電子消滅に誘起される試料表面の動的過程の理解を進める。

3. 研究の方法

陽電子消滅誘起イオン脱離を観測するための装置を、東京理科大学の低速陽電子発生装置を利用して開発した。Na²² 線源から得られる白色陽電子ビームは、タングステンメッシュへの入射によって減速・単色化する。単色陽電子ビームは、ヘルムホルツコイルを用いた輸送磁場 (~100G) によって実験チェンバー内の試料まで導かれる。陽電子発生装置と実験チェンバーとの接続部には加速管が取り付けられていて、陽電子を任意のエネルギーまで加速することができる。

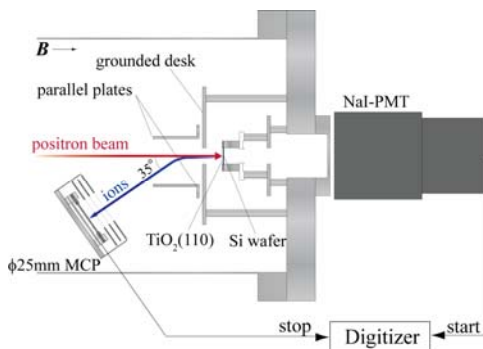


Fig.1. 陽電子誘起イオン脱離測定装置の概略図

脱離イオン検出システムの概略図を Fig. 1. に示す。到達真空度 $\sim 3 \times 10^{-8}$ Pa の実験チェンバー内に輸送されてきた陽電子ビームは、静電偏向板 (40 × 40mm) 間の電場によってわずかにドリフト運動した後、円形プレートの中心穴 ($\phi 13$ mm) に向かう。円形プレートと試料表面の距離は 15mm である。試料の $\text{TiO}_2(110)$ には 300V の電圧が印可されているので、300eV 以上の陽電子は円形プレートと試料の間で減速してから試料表面まで到達する。 $\text{TiO}_2(110)$ はシリコンウェハー上に取り付けられていて、ウェハーを通電加熱することにより 1000K でのアニール処理を施してある。

脱離イオンは、質量に起因する陽電子との磁場環境での振る舞いの違いを利用して検出する。陽電子と同様に、脱離イオンも輸送磁場に沿って旋回運動をはじめますが、陽電子に比べて質量が大きいため、その回転運動の周期は陽電子に比べて桁違いに大きい。そのため、300eV まで加速した脱離イオンは、静電偏向板の位置までほぼ直進して進む。イオンが静電偏向板間まで到達すると、そこでの電場によって軌道を大きく曲げて、有効径 25mm のマルチチャンネルプレート (MCP) によって検出される。MCP は陽電子ビーム軌道軸から 35 度の方向に傾いて取り付けられている。また、試料と MCP の距離は 127mm である。脱離イオンの測定と同時に、NaI シンチレータを取り付けた光電子増倍管 (NaI-PMT) を試料後方に設置して、ターゲットから放出する消滅 γ 線も検出した。MCP と NaI-PMT からの信号は、高速デジタイザーボードを使って直接 PC に取り込み、それらの信号の時間相関から脱離イオンの飛行時間スペクトルを取得した。

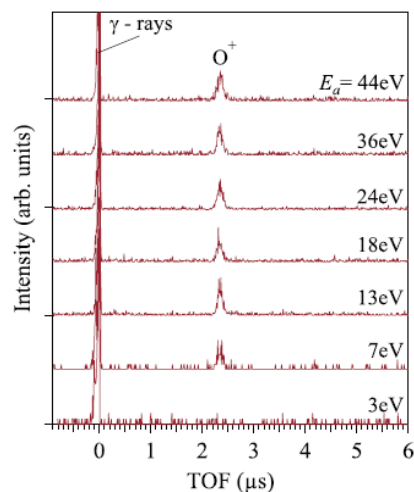


Fig. 2. $\text{TiO}_2(110)$ 表面から陽電子刺激脱離するイオンの TOF スペクトル

4. 研究成果

TiO₂(110) 表面から陽電子刺激脱離する O⁺イオンの TOF スペクトルを Fig. 2 に示す. 図中の数字は入射陽電子エネルギーを示している. 3eV 入射以外のスペクトルにおいて, 2.4 μs 付近にピークが確認できる. これらは飛行時間から O⁺イオンの信号であることがわかった. 3eV 入射の場合にイオンの信号が検出されなかったのは, 試料に入射する前にほとんどの陽電子が基板へ印加した電圧により追い返されてしまったことが原因である.

電子線や光照射の場合でも O⁺イオンの脱離は観測されるが, その入射エネルギーしきい値は~34eV であり, Ti3p の内殻イオン化エネルギーと一致することが知られている. ほかに Ti2s, Ti2p, Ti3s, Ti3p, O1s の内殻イオン化 (およびそのサテライト) により O⁺イオンの脱離が引き起こされることが明らかにされている. 一方陽電子入射の場合, その脱離しきい値よりも十分低い入射エネルギーでも, O⁺イオンの脱離が観測された, この結果は, 入射陽電子と内殻電子との対消滅によって O⁺イオンの脱離が誘起されたと解釈できる.

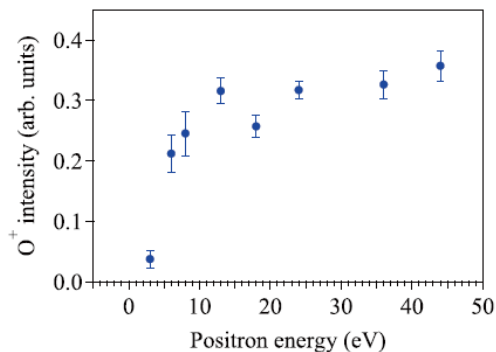


Fig. 3. TiO₂(110)表面から陽電子刺激脱離する O⁺イオン収量の入射陽電子エネルギー依存性

イオン脱離が陽電子消滅に誘起されたことは, Fig. 3 に示した O⁺イオン収率の入射エネルギー依存性の結果にも強く反映されている. 電子衝撃脱離の場合, 入射電子エネルギーが脱離しきい値エネルギーをわずかにでも超えると, O⁺イオンの脱離収量が急激に増加する. それに対して陽電子入射による脱離では, 脱離収率はほぼ一定となった. この結果は, 陽電子との表面原子の電子との対消滅の確率が収量に依存することを意味している.

以上のように, TiO₂(110)から陽電子消滅に誘起される O⁺イオンの脱離を観測することに成功した. さらに, 入射陽電子エネルギー依存性から内殻電子との消滅により脱離が起こることを明らかにした. これは世界で初めて観測された現象であり, 現在, 得られた成果を欧文誌に投稿中である.

5. 主な発表論文等

(研究代表者, 研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 7 件)

- ① 低速陽電子入射による TiO₂(110)からの内殻電子消滅誘起イオン脱離の観測, 立花隆行, 平山孝人, 長嶋泰之, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 03 月 29 日 (広島大学)
- ② 低速陽電子入射による TiO₂(110)からの内殻電子消滅誘起イオン脱離, 立花隆行, 長嶋泰之, 平山孝人, 和田健, 望月出海, 兵頭俊夫, 物構研サイエンスフェスタ, 2013 年 03 月 14 日 (筑波国際会議場エポカル)
- ③ TiO₂(110)からの陽電子-内殻電子対消滅誘起イオン脱離の観測, 立花隆行, 平山孝人, 長嶋泰之, 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, 2012 年 11 月 30 日 (京都大学原子炉実験所)
- ④ TiO₂表面上からの陽電子刺激イオン脱離, 立花隆行, 平山孝人, 長嶋泰之, KEK 低速陽電子実験施設における陽電子回折研究および Ps ビーム研究の展開 (基調講演), 2012 年 10 月 03 日 (高エネルギー加速器研究機構)
- ⑤ 消滅 γ 線-イオン同時計測法による TiO₂表面からの陽電子刺激イオン脱離の観測, 立花隆行, 平山孝人, 長嶋泰之, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 09 月 18 日 (横浜国立大学)
- ⑥ TiO₂(110)表面からの陽電子刺激脱離イオンの観測, 立花隆行, 平山孝人, 長嶋泰之, 原子衝突学会第 37 回年会, 2012 年 07 月 28 日 (電気通信大学)
- ⑦ 飛行時間法を用いた TiO₂表面からの陽電子刺激イオン脱離の観測, 立花隆行, 長嶋泰之, 第 49 回アイソトープ・放射線研究, 2012 年 07 月 10 日 (東京大学)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

立花 隆行 (TACHIBANA TAKAYUKI)

立教大学・理学部・助教

研究者番号：90449306