

反射高速陽電子回折 (RHEPD) 法による 物質最表面構造解析

深谷有喜¹、前川雅樹¹、望月出海²、和田健²、兵頭俊夫²、河裾厚男¹

¹原子力機構先端基礎研、²KEK物構研

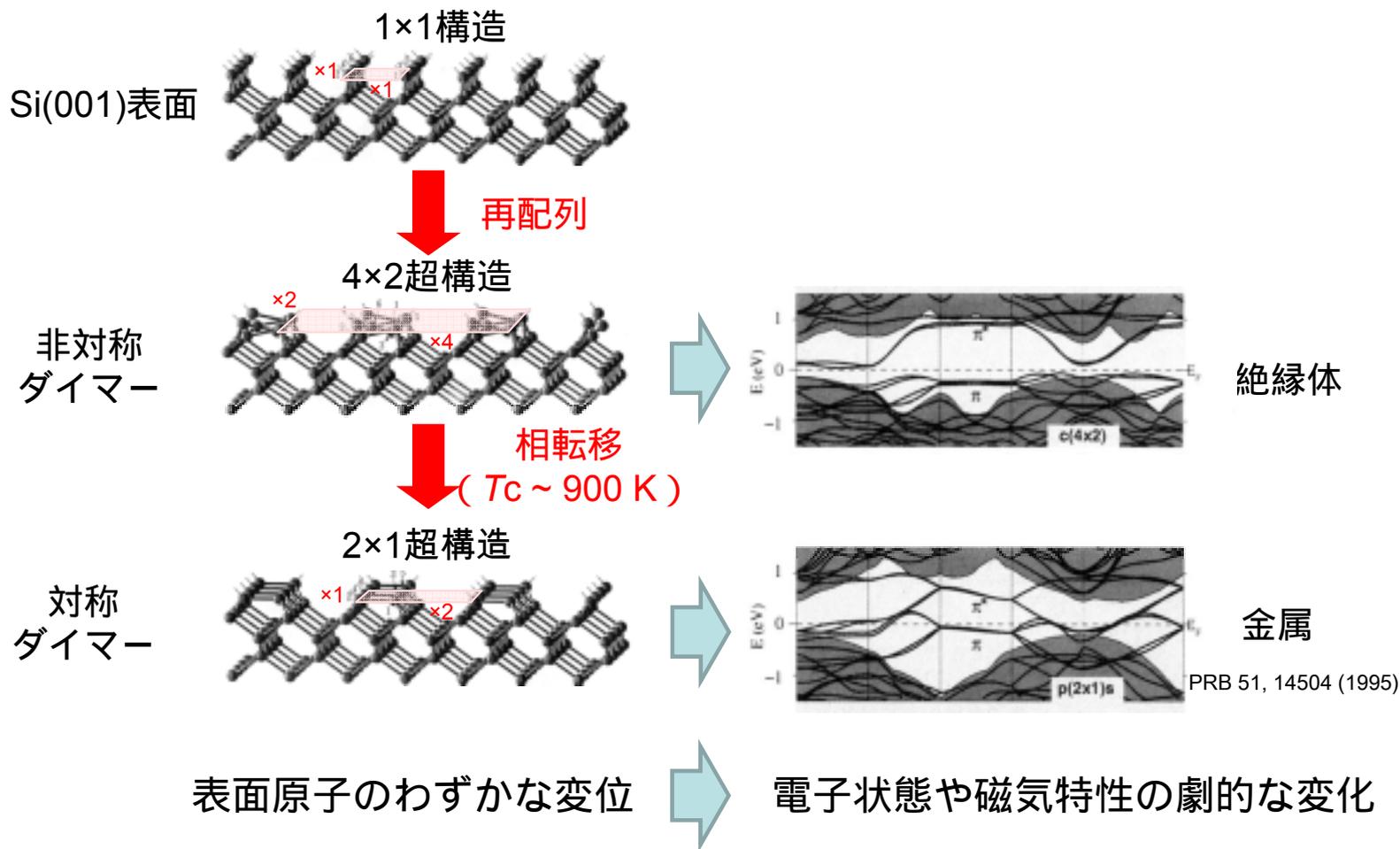
第1回 先進的観測技術研究会 -局所構造解析、イメージングの最前線-

KEK 研究本館 小林ホール

平成24年12月26日

1. 反射高速陽電子回折 (Reflection high-energy positron diffraction, RHEPD) の表面研究における有用性
2. RHEPDによる表面構造解析
 - Si(111)- $\sqrt{21} \times \sqrt{21}$ -Ag表面 (2次元金属)
 - Si(111)- 4×1 -In表面 (1次元金属)
3. 電子線形加速器 (LINAC) を用いた高強度・高輝度 RHEPD装置の開発
 - 回折パターンの観測
 - ・ 電子との比較
4. まとめ

表面構造は結晶内部（バルク）とは異なる

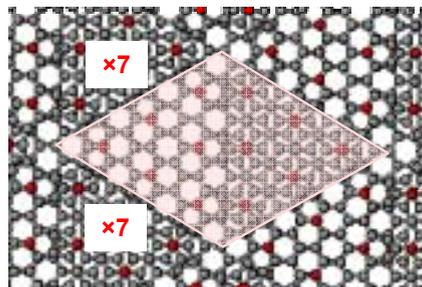


バルクとは異なった
異種原子の吸着

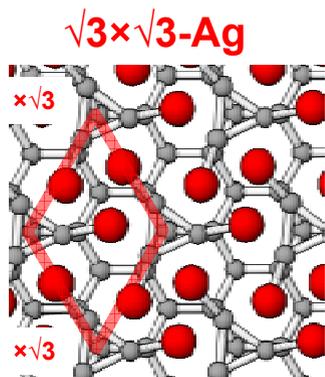


多様な表面構造

例えば...

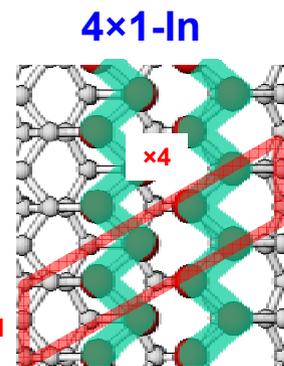


Si(111)-7×7清浄表面



Ag原子を
1原子層吸着

2次元金属
(面内に等方的な電気伝導)



In原子を
1原子層吸着

1次元金属
(原子鎖に沿った電気伝導)



表面電子状態や磁気特性は、
深さ2 Å以内の原子変位によって決まる



完全な理解のためには、原子配置の理解が必要



表面敏感な構造解析が重要



陽電子回折

生成法

対生成 光(X線)から陽電子と電子が対生成することがある。

+崩壊 放射性同位体の **+核変**から陽電子、ニュートリノが発生する。

性質

電子の反粒子 電荷の符号以外の物理量は電子と全く同じ。

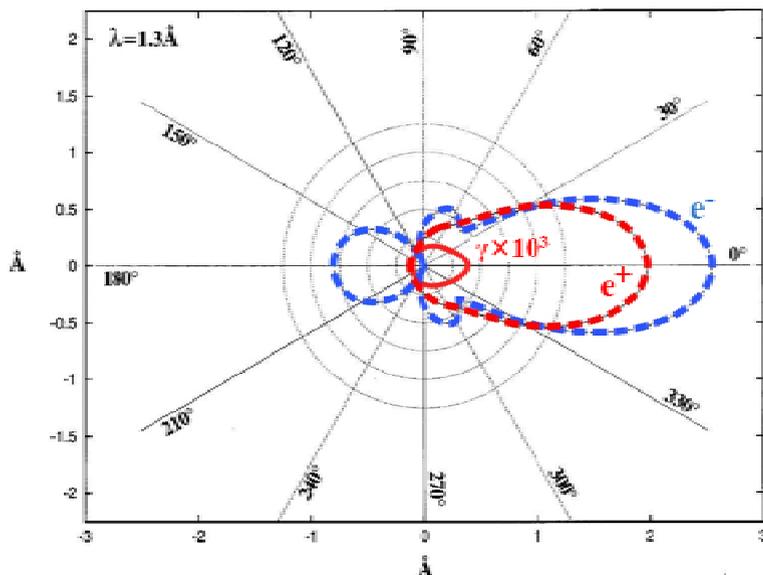
対消滅 物質中で電子と対消滅して複数本の光(**線**)になる。

1. X線と比べ原子との相互作用が強い



高精度な表面構造決定

2. 電子と比べ原子散乱因子の形状がシンプル



Tong et al., PRB 58, 10815 (1998)

電子・陽電子 : 95 eV

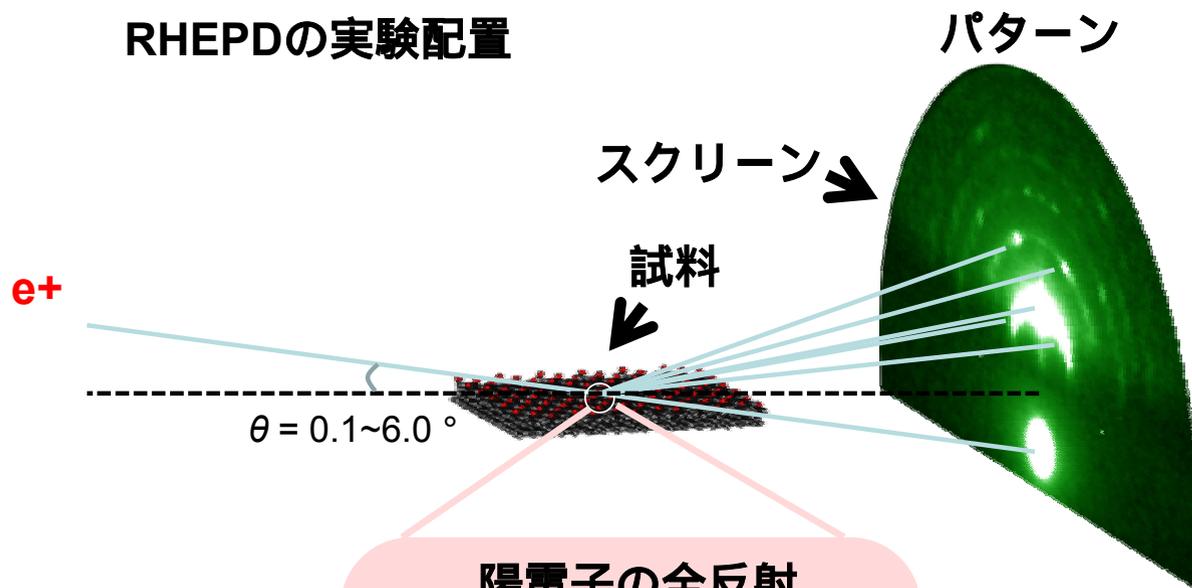
光子 : 9.6 keV

3. 表面敏感

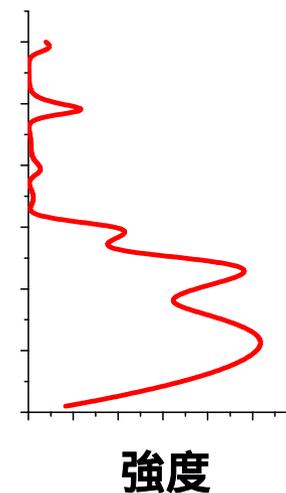


電子と比べ非弾性散乱断面積が大きい

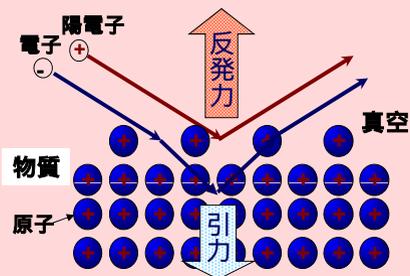
RHEPDの実験配置



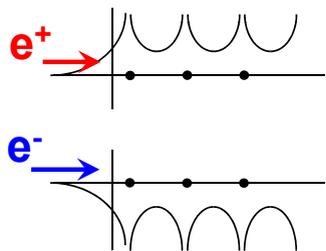
ロックング曲線



陽電子の全反射



陽電子と電子の エネルギーダイアグラム



結晶中における陽電子の
運動エネルギーの表面垂直成分

$$E_{\perp} = E_{0\perp} - eV_0$$

ここで、 $E_{0\perp} = E_0 \sin^2 \theta$

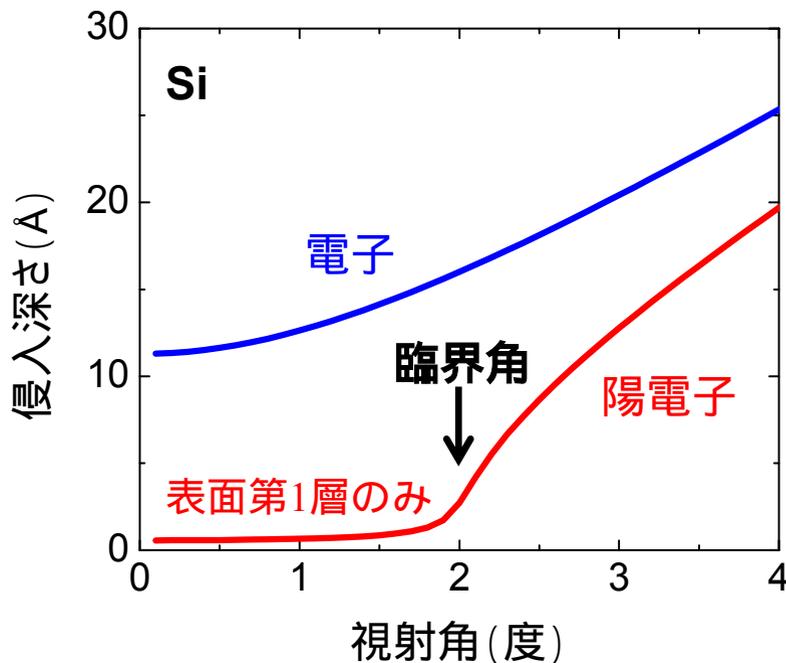
視射角が小さくなり、

$$E_0 \sin^2 \theta < eV_0$$

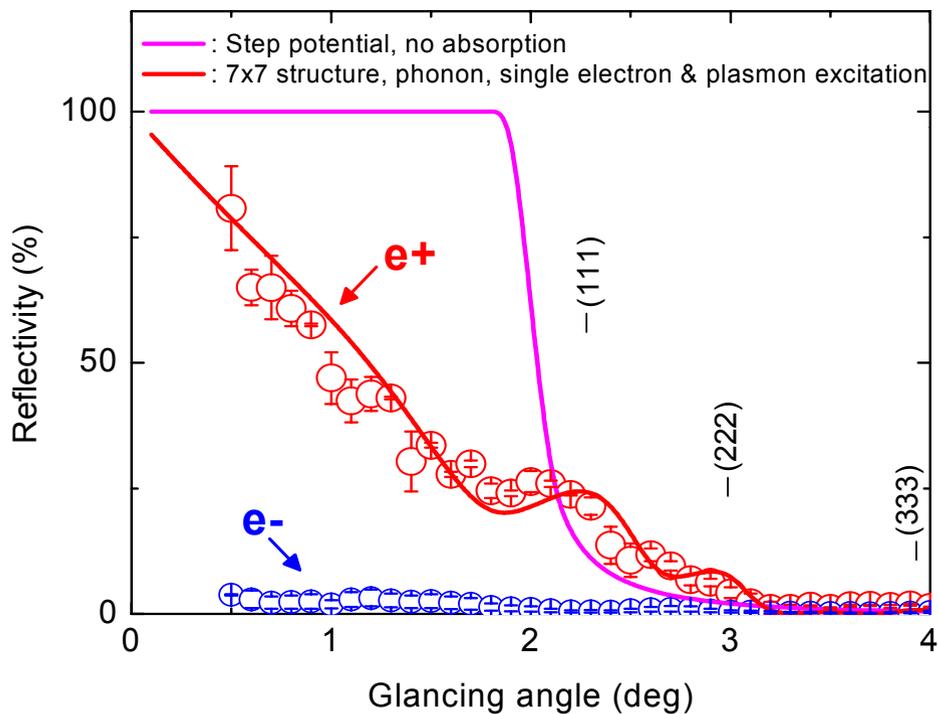
全反射が起こる



陽電子ビームの侵入深さ (10 keV)



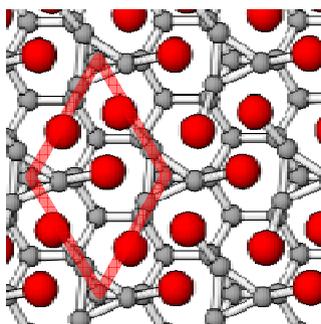
全反射の臨界角：2.0° (Si)



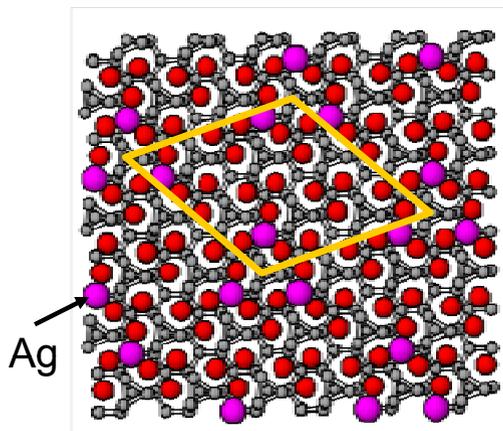
陽電子の絶対反射率は、電子の約15倍

➡ 表面敏感

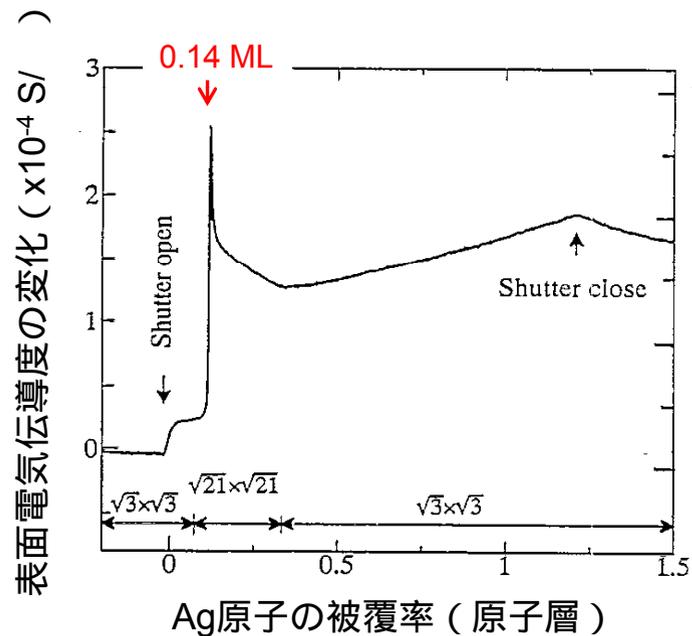
Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面



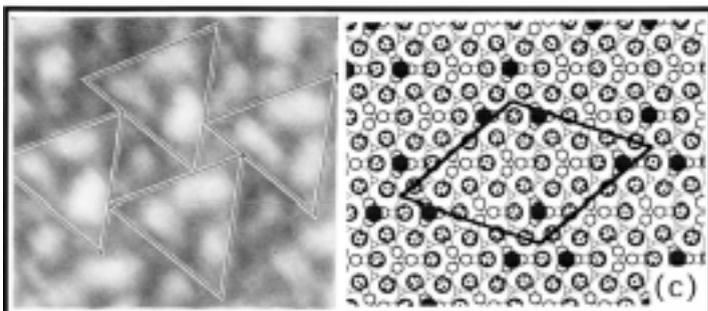
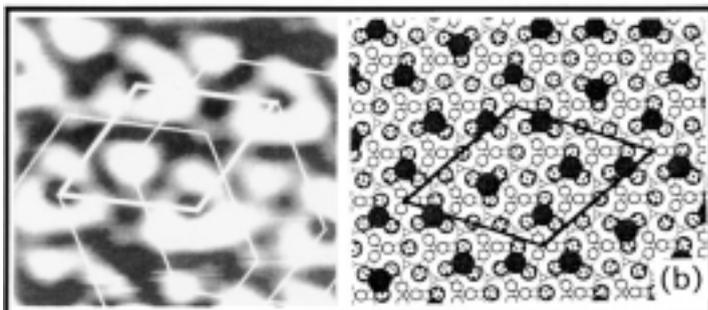
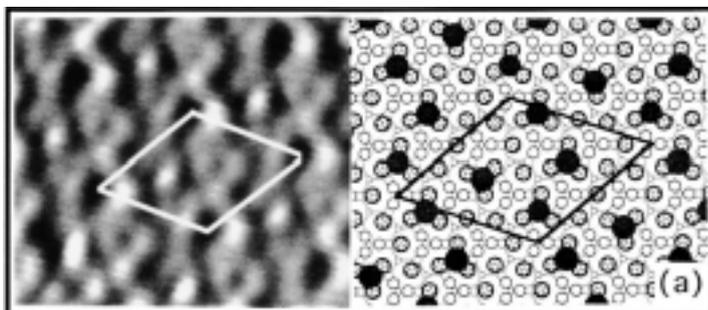
↓ 微量のAg原子を蒸着



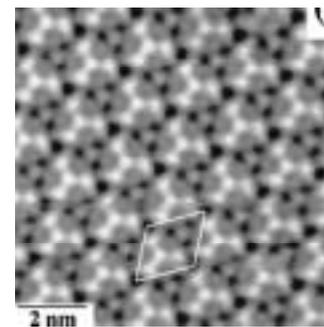
Si(111)- $\sqrt{21} \times \sqrt{21}$ -Ag超構造



Hasegawa, Surf. Sci. (1997).



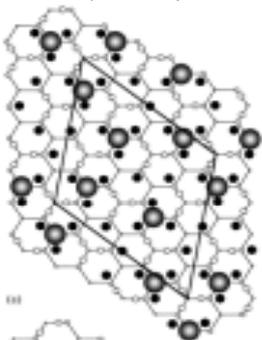
○ ○ ○ Si atoms ⊙ Ag atoms ● Ag(Au) adatoms



X. Tong et al., Phys. Rev. B 64, 205316 (2001).

X. Tong et al., Surf. Sci. 408, 146 (1998).

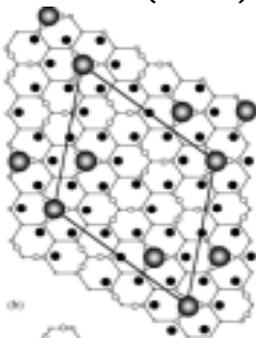
J. Nogami et al,
SS 306 (1994) 81.



(a)

(b)

A. Ichimiya et al,
SRL1(1994) 1



(a)

(b)

X. Tong et al,
PRB55(1997)1310.

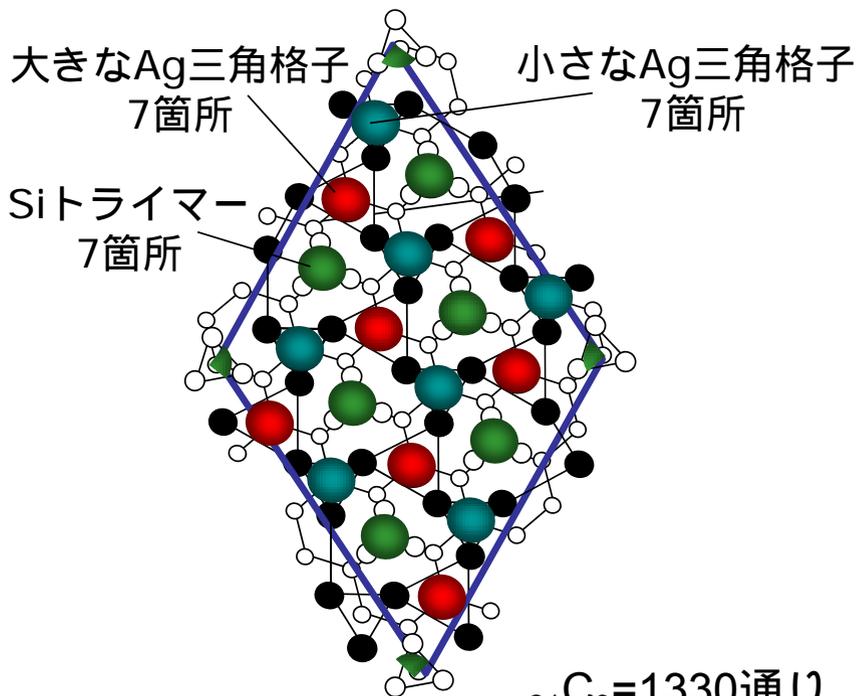
(a)

(b)

H. Tajiri et al,
SS493(2001)214

(a)

(b)



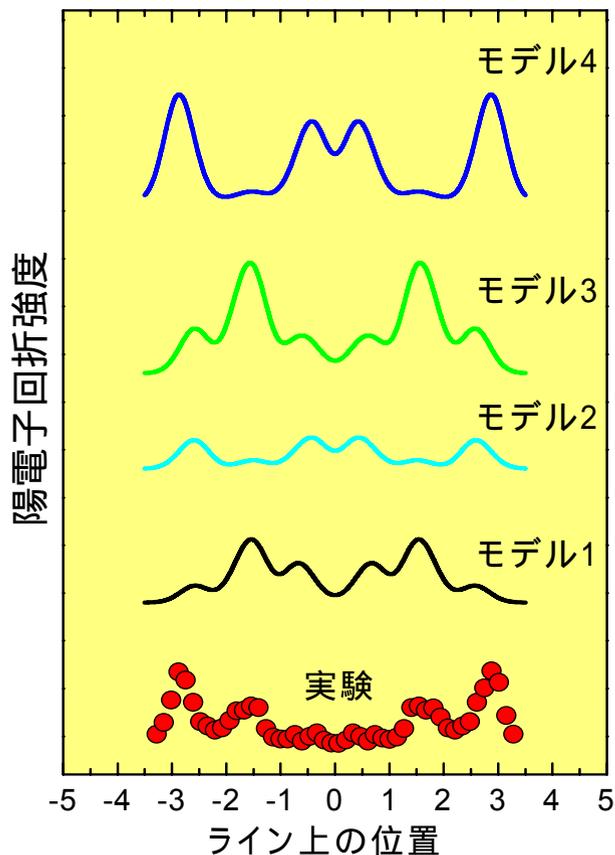
吸着可能サイト : 21箇所
吸着原子数 : 3~5個

$${}_{21}C_3 = 1330 \text{通り}$$

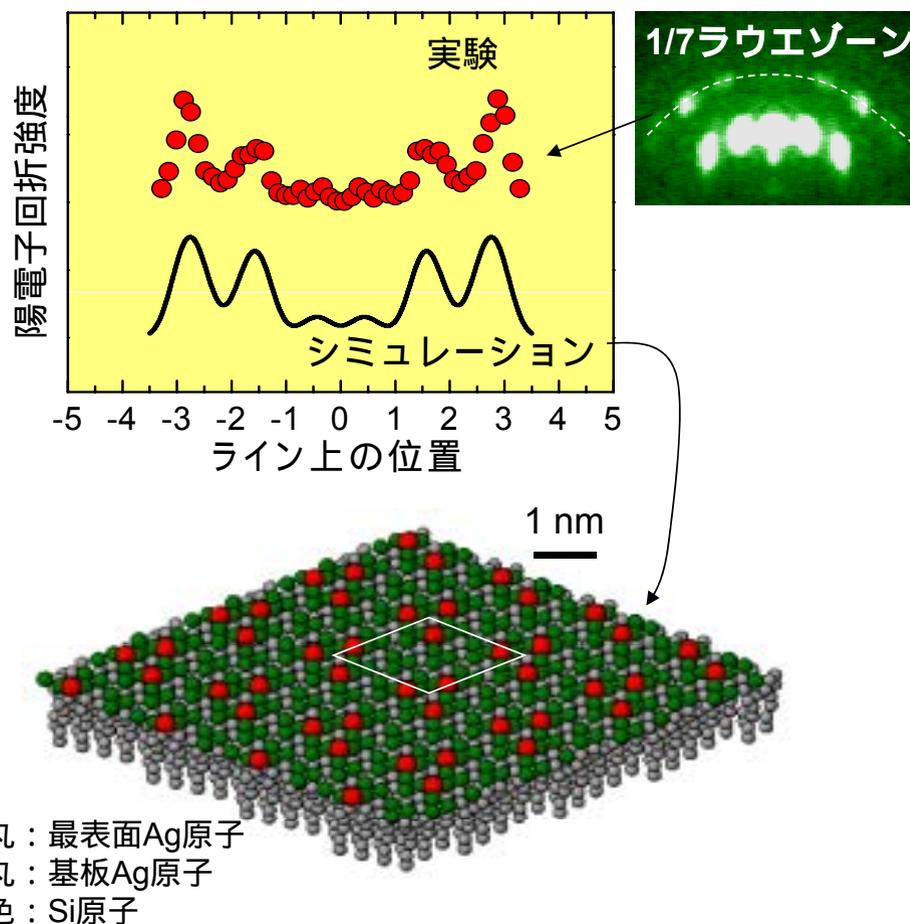
$${}_{21}C_4 = 3990 \text{通り}$$

$${}_{21}C_5 = 20349 \text{通り}$$

多くのモデルが提案されるが、原子配列は不明



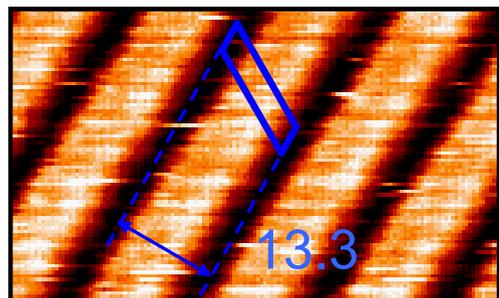
他手法の構造→説明困難



擬一次元インジウム原子鎖の 金属絶縁体転移

走査型トンネル顕微鏡 (STM) 像 120 K以下で電気伝導度が3桁以上減少

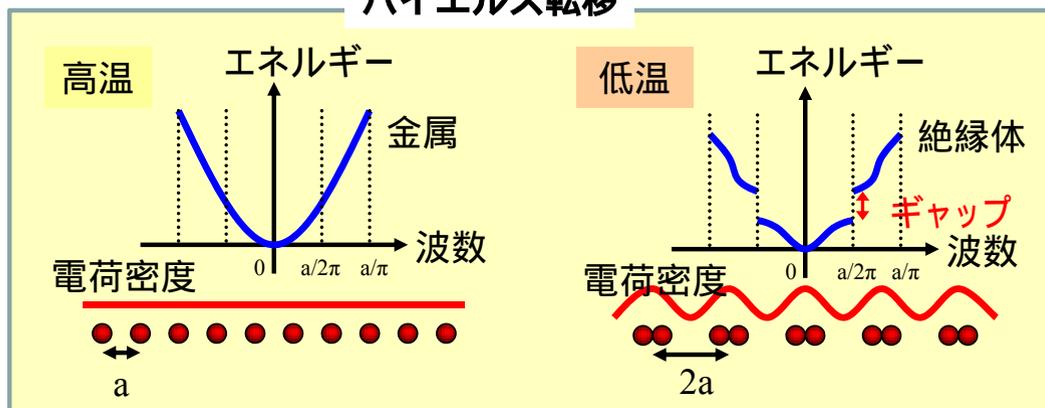
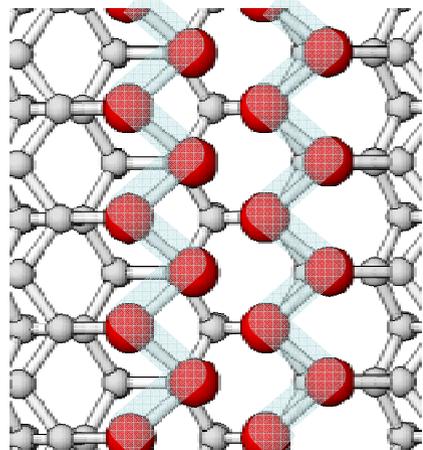
Tanikawa, PRL (2004)



金属-絶縁体転移

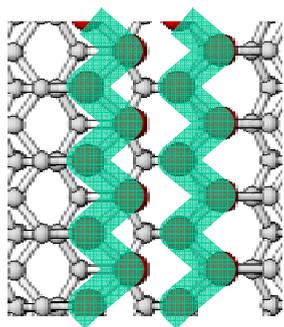
パイエルス転移

ジグザグチェーン構造



In原子の微小な原子変位

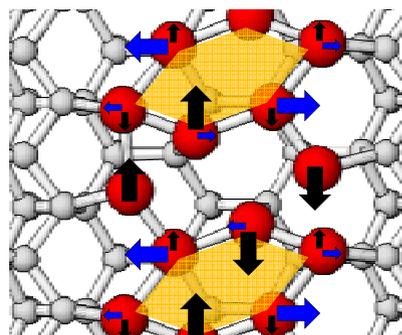
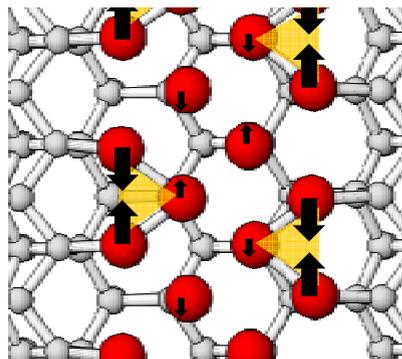
ジグザグチェーン構造



冷却
 ↓
 8 × 2構造
 の形成
 ↓
 冷却

トライマーモデル

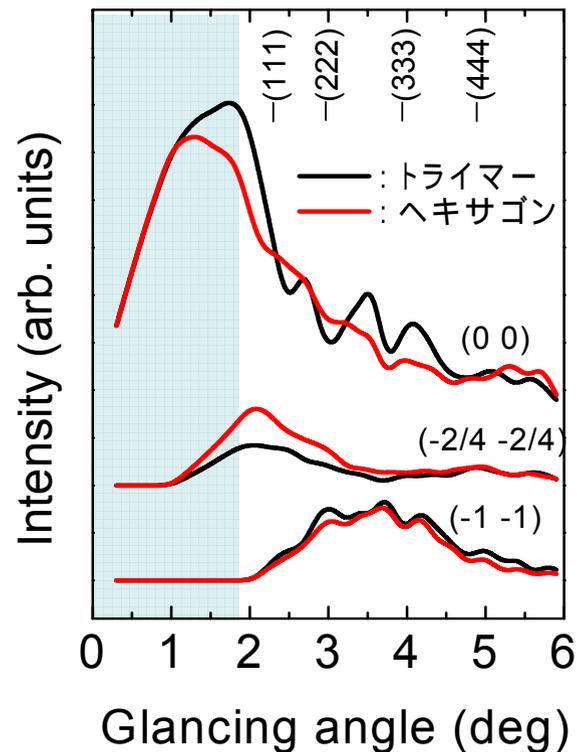
López-Lozano, PRB (2006)



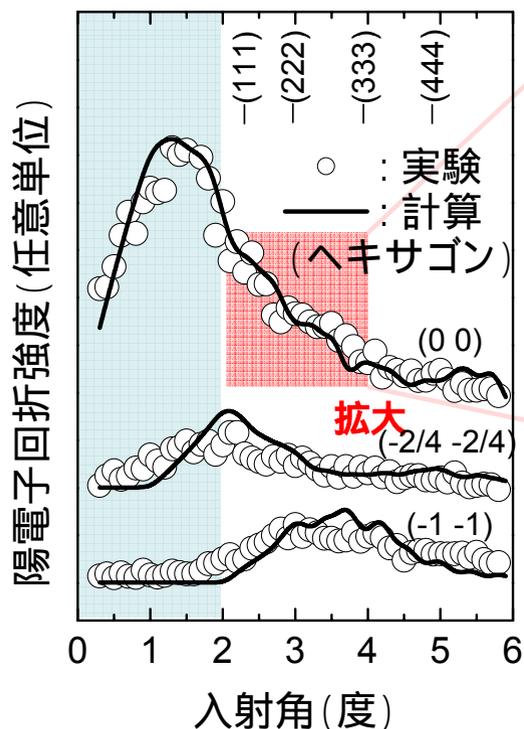
ヘキサゴンモデル

González, PRL (2006)

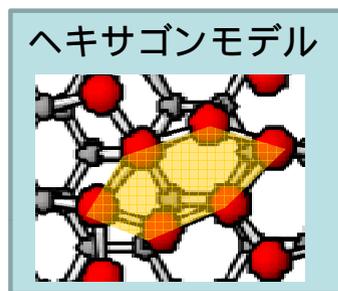
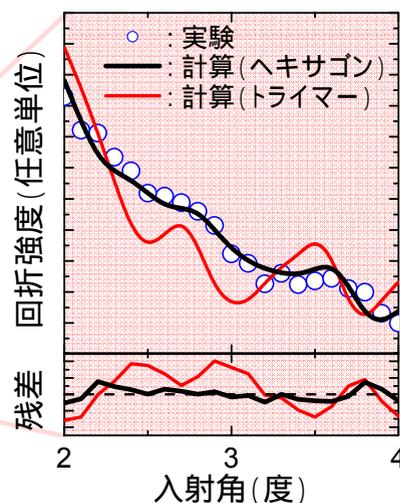
ロッキング曲線の比較



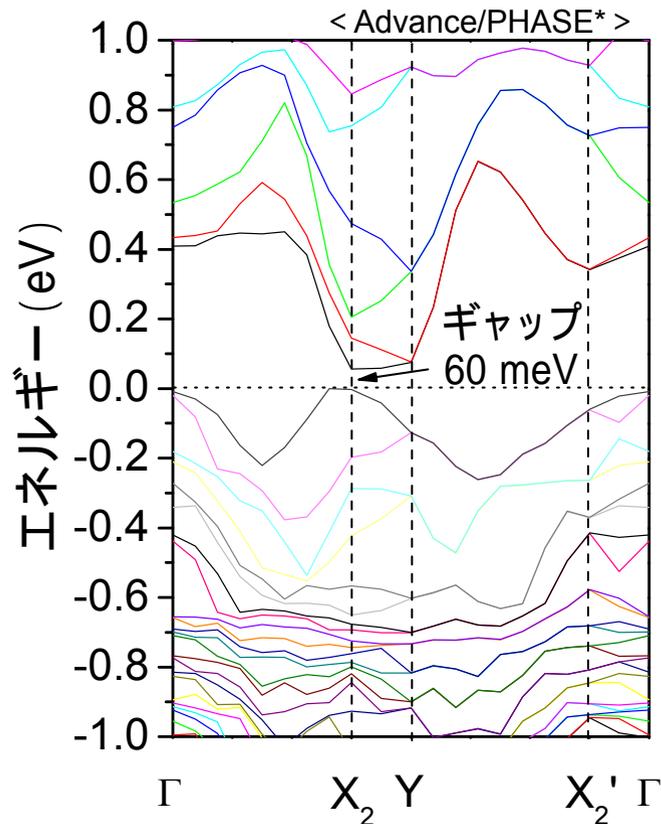
ロッキング曲線の解析

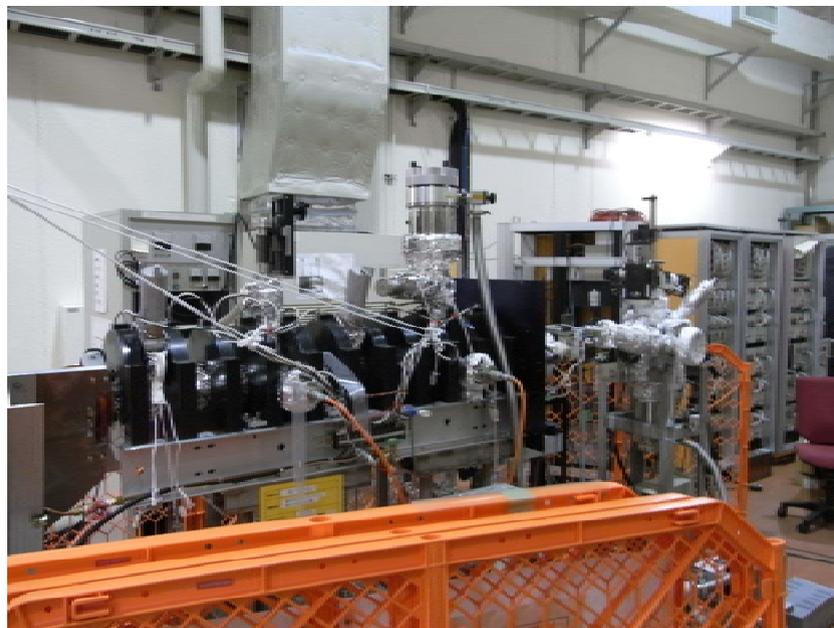


高分解能測定

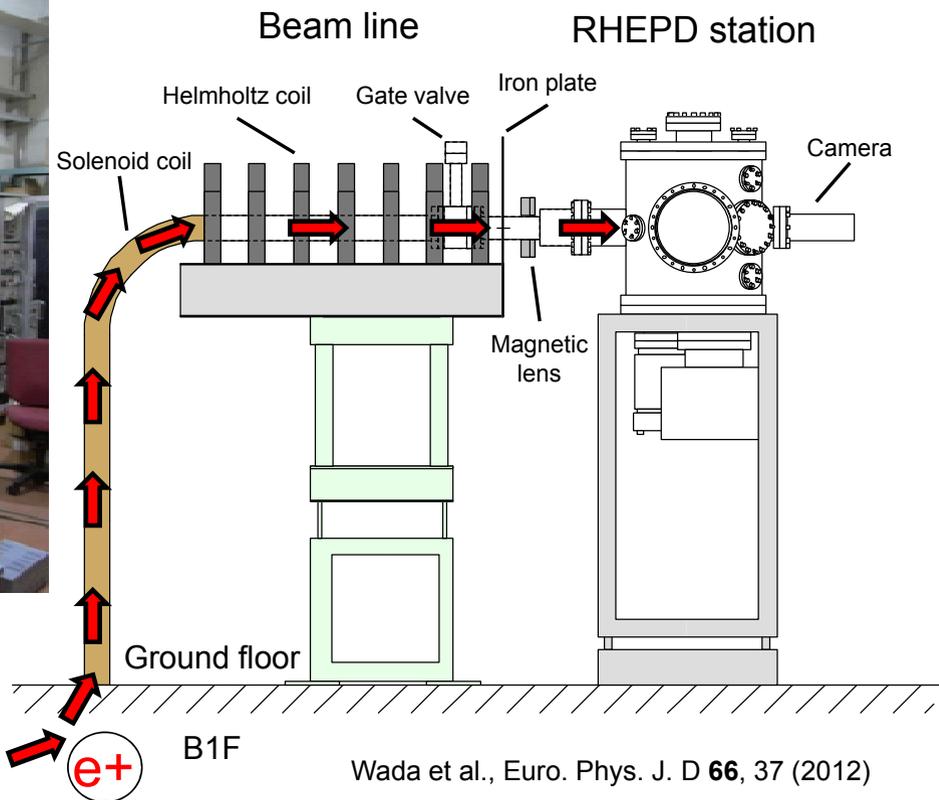
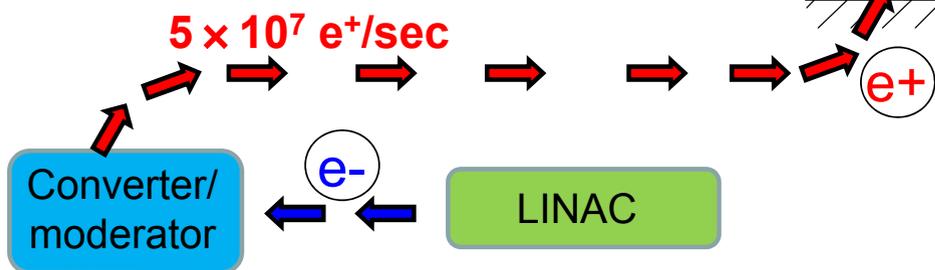


電子バンド構造計算





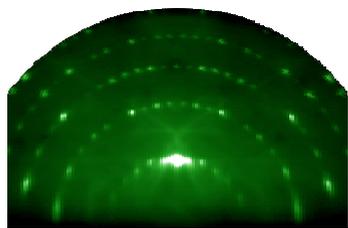
KEK低速陽電子実験施設 (1階)



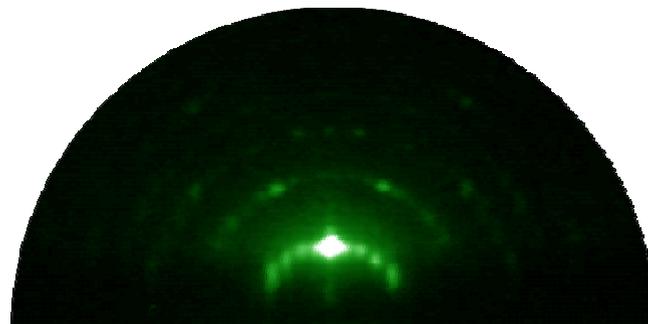
回折パターンの比較：陽電子と電子 Si(111)-7×7表面

実験

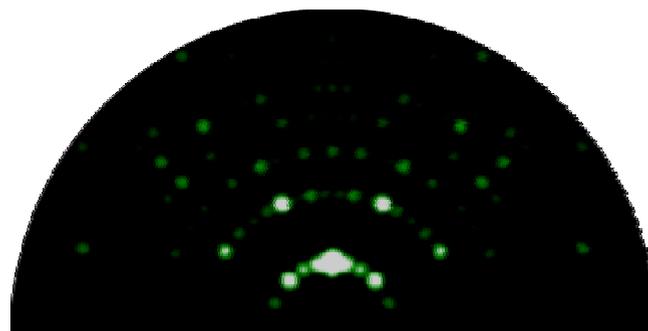
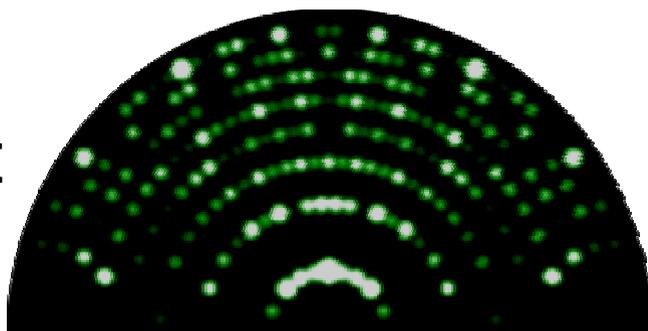
electron



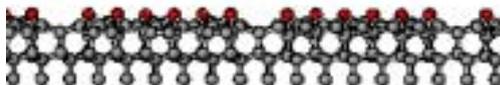
positron



計算



RHEPDパターン シミュレーションとの比較

Si(111)-7 × 7表面（断面）：

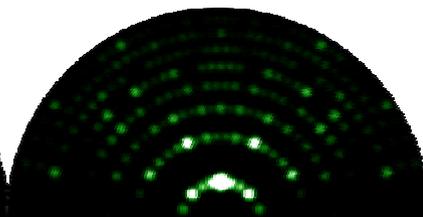
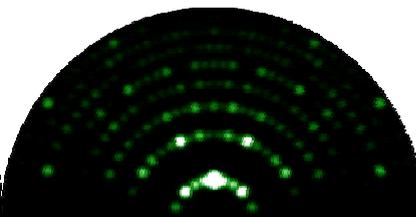
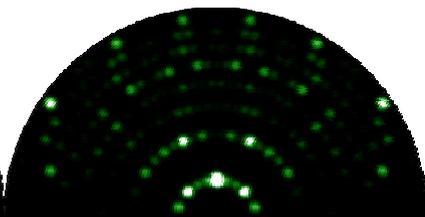
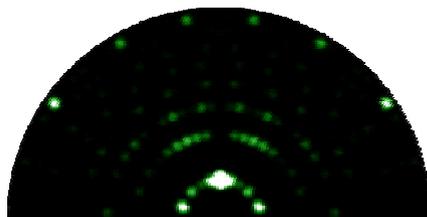
計算

最表面原子のみ

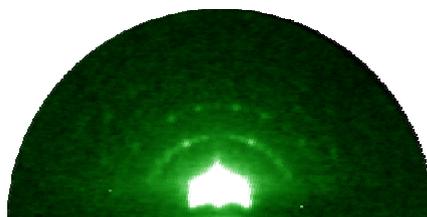
第2層まで

第3層まで

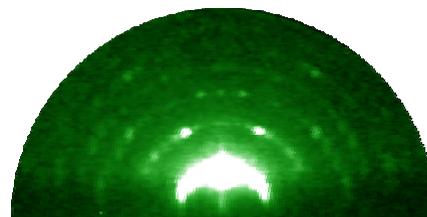
全て考慮



実験

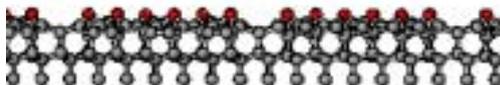


$\theta = 1.3^\circ$ （全反射）



$\theta = 2.2^\circ$ （111ブラッグ反射）

RHEEDパターン シミュレーションとの比較

Si(111)-7 × 7表面（断面）：

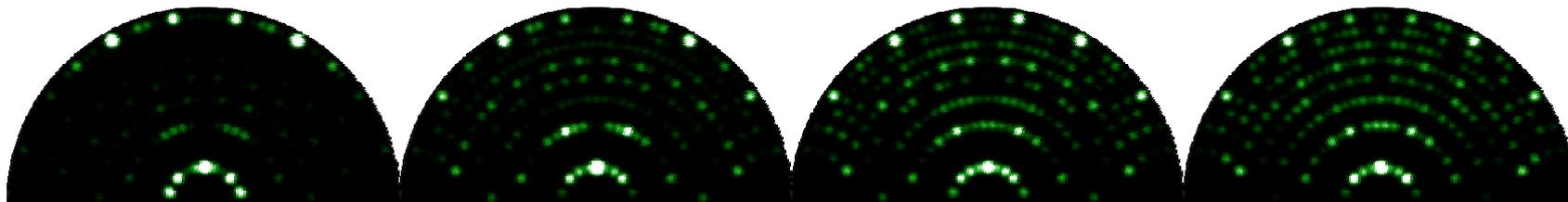
計算

最表面原子のみ

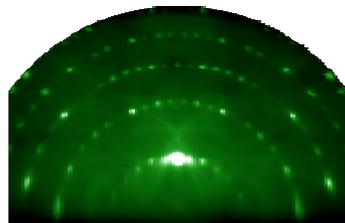
第2層まで

第3層まで

全て考慮



実験



$\theta = 2.7^\circ$ (333ブラッグ反射)

KEKの高強度・高輝度陽電子ビームでできること

- **高い統計精度** ← 詳細な原子位置決定
- **迅速測定** ← 表面ダイナミクス
- **重金属に有効** ← ラッシュバ表面の研究
- **パターンソン解析** ← 原子位置の直接決定

謝辞



This work was performed under the approval of the Photon Factory Program Advisory Committee (Proposal No. 2010G652 & 2012G653).



本研究はJSPS科研費（基盤(S) 24221007、若手(B) 22740205）の助成を受けたものです。