

大型施設における固体物理・原子分子物理実験

KEK物構研 低速陽電子実験施設を例に

(2024年2月1日 核融合科学研究所)

KEK 物質構造科学研究所

低速陽電子実験施設

兵頭俊夫

SPF, Collaborators and Users

Slow Positron Facility (SPF)

Dir.: N. Kosugi (concurrent)
G. Leader: K. Amemiya (concurrent)
Associate Prof.: K. Wada
Assistant Prof.: I. Mochizuki
Post Doc. Researcher: R. Ahmed
Guest Prof.: T. Hoshi
Assoc. Researcher : T. Hyodo
Assoc. Researcher : A. Ichimiya
Assoc. Researcher : S. Mizuno
Ex Cross app. Prof.: Y. Nagai
Ex Guest Prof.: Y. Nagashima

Collaborators and Users

- Hokkaido Univ.: Asakura, H. Ariga
- Tohoku Univ.: T. Hanada
- JAEA: Y. Fukaya, S. Shamoto
- QST: A. Kawasuso, M. Maekawa, H. Li
- AIST: T. Hirakawa, K. Michishio
- Univ of Tokyo: S. Hasegawa, I. Matsuda, A. Ishida, S. Asai, K. Shu, K. Yoshioka
- Waseda Univ.: A. Takayama
- Rikkyo Univ.: K. Edamoto, N. Maejima
- Tohoku Univ.: R. Yukawa
- Hiroshima Univ.: N. Nakajima
- Kyushu Univ.: S. Tanaka

KEK Accelerator: A. Shirakawa, K. Furukawa, T. Shidara, S. Ohsawa, M. Ikeda, H. Honma
KEK Radiation Control: H. Iwase, T. Sanami



OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 4個の測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性和その方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

高エネルギー加速器研究機構 (KEK) つくばキャンパスの 加速器

電子・陽電子衝突型加速器: Super KEKB加速器
(直径: 約1km、電子7GeV、陽電子4GeV)

PF-AR (直径約120m、電子6.5GeV)

PF (直径約60m、電子2.5GeV)

放射光科学研究施設

電子・陽電子線形加速
(全長: 約400m、電子7GeV、陽電子4GeV)

入射器棟

正門

低速陽電子実験施設 (専用線形加速器全長10m、電子50MeV)

KEK東海キャンパス - JPARC



物構研(物質・生命科学実験施設): 中性子, ミュオン

4つの量子ビームと大型施設

- 光子： 加速器施設(シンクロトン放射光) ⇔ 実験室のX線発生装置やレーザー光源
- 中性子： 実験用原子炉施設, 加速器施設
- ミュオン： 加速器施設
- 陽電子： 実験用原子炉施設, 加速器施設 ⇔ 実験室でのアイソトープ利用

- 共用施設： Spring-8, Nano Terasu 等, 基本的に有料

→ NEEDSに応える。

- 大学共同利用法人の施設： KEK, NIFS 等, 基本的に無料

→ 科学・技術のSEEDSを生み出す。

多くの大学研究室が利用 → **人材育成。**

設置の基礎となる法律は異なるが、性格・役割には重なる部分も多い。

OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 4個の測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性和その方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF のステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

陽電子

陽電子 (e^+) は、電子 (e^-) の反粒子

電子: 最初に見いだされた素粒子

1897年に、J. J. トムソン (英) が発見。

陽電子: 最初に見いだされた反粒子 (1932年)

ディラック方程式 (1928年) の解の解釈として

1931年に、ディラック (英) により予言されていた。

1932年に、アンダーソン (米) が予言を知らずに発見。

最もよく応用されている身近な反粒子。

PET (陽電子放出断層撮影): がんの診断

陽電子を手に入れる方法

1 高エネルギー光子(X線、γ線)からの電子・陽電子対生成(高強度)

高エネルギー光子(X線、γ線)を得る方法

(a) 高エネルギー電子線を重金属に入射したときの制動放射X線

(b) 原子炉からのγ線, または中性子をCd吸収させたときのγ線

(c) レーザー逆コンプトン効果

1' 超高強度レーザーからの電子・陽電子対生成

2 放射性同位元素からの陽電子(手軽)

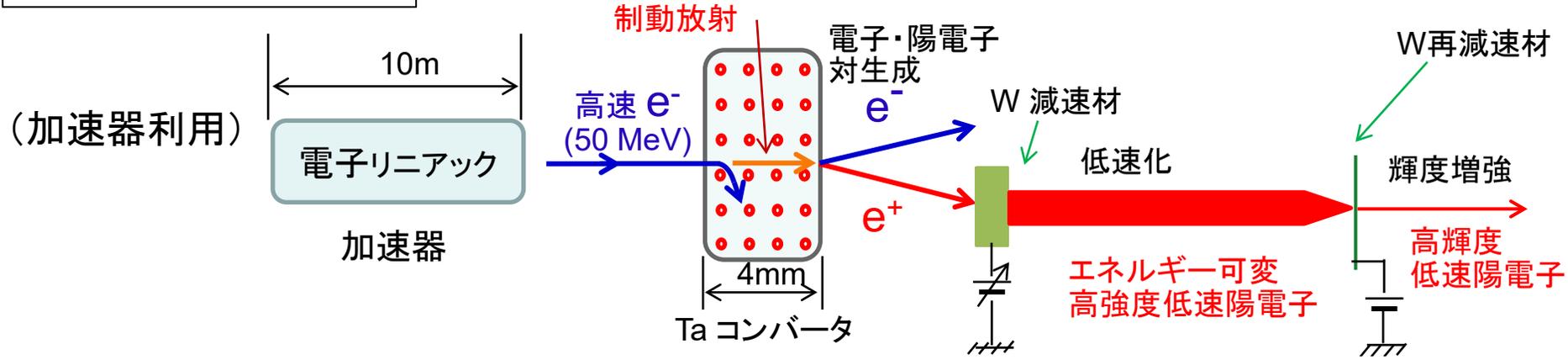


核種	主な生成反応	半減期	陽電子の割合	E_{\max}/MeV
${}^{18}\text{F}$	${}^{18}\text{O}(\text{p}, \text{n}){}^{18}\text{F}$	110 m	97%	0.635
${}^{22}\text{Na}$	${}^{24}\text{Mg}(\text{d}, \alpha){}^{22}\text{Na}$	2.6 y	90%	0.546
${}^{64}\text{Cu}$	${}^{63}\text{Cu}(\text{n}, \gamma){}^{64}\text{Cu}$	12.7 h	19.3%	0.571
${}^{68}\text{Ga}$	${}^{69}\text{Ga}(\text{p}, 2\text{n}){}^{68}\text{Ge} (\text{EC}) {}^{68}\text{Ga}$	288d	90%	1.90

高エネルギー光子の発生法

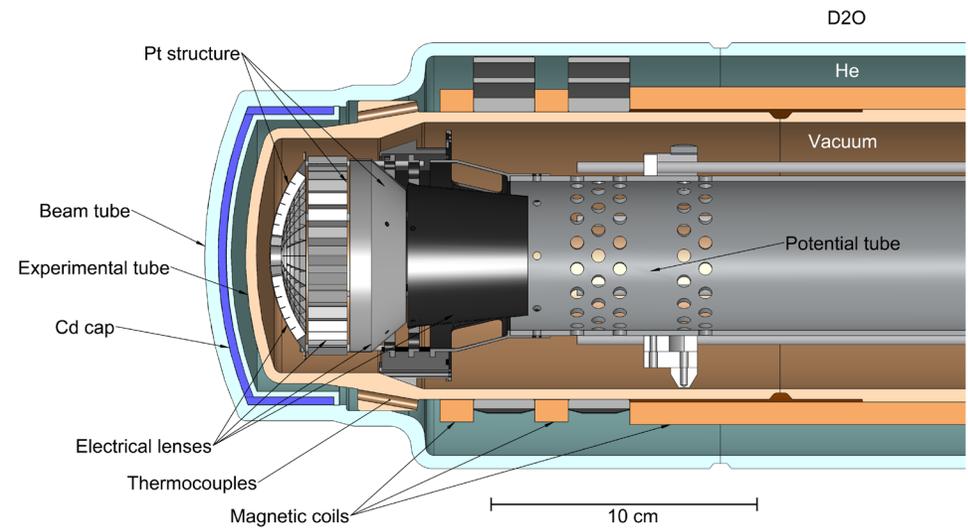
KEK-IMSS-SPF
つくば

Lineac で加速した電子 → 制動放射X線



FRM II – NEPOMUC
ミュンヘン工科大

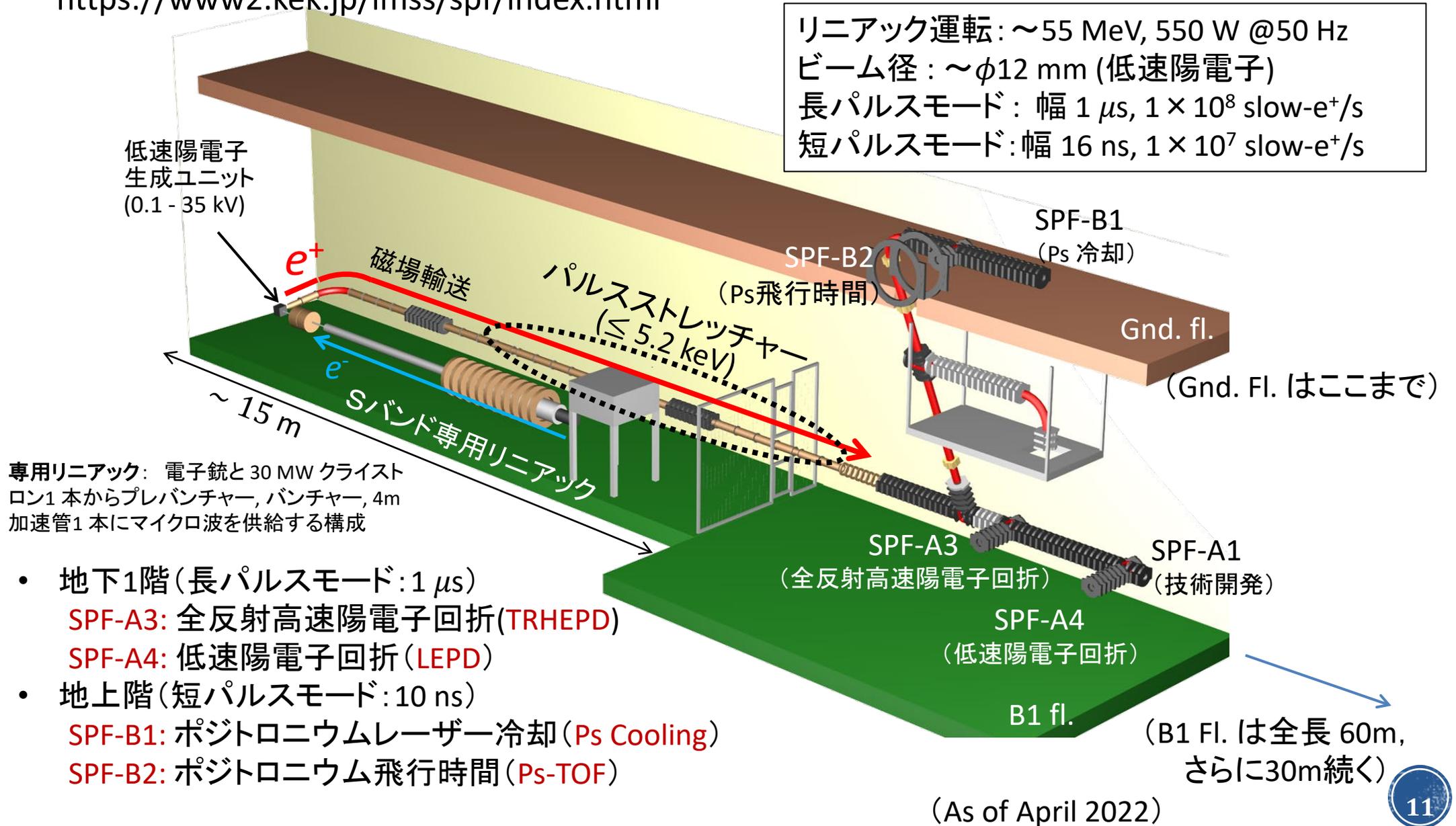
炉心からの中性子 →



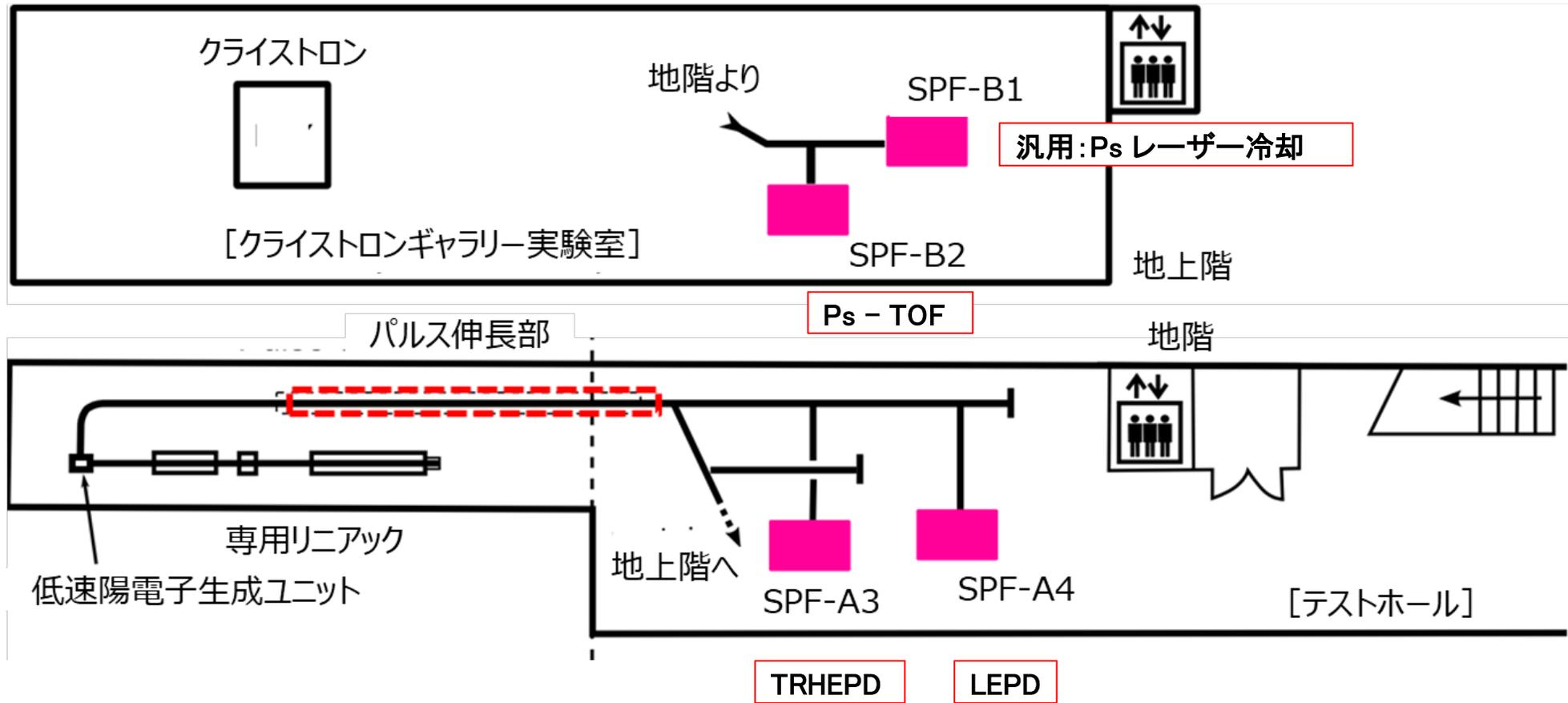
C. Hugenschmidt, et al., J. Phys. Conf Ser. 443, 012079 (2013)

KEK 物構研(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF)

<https://www2.kek.jp/imss/spf/index.html>



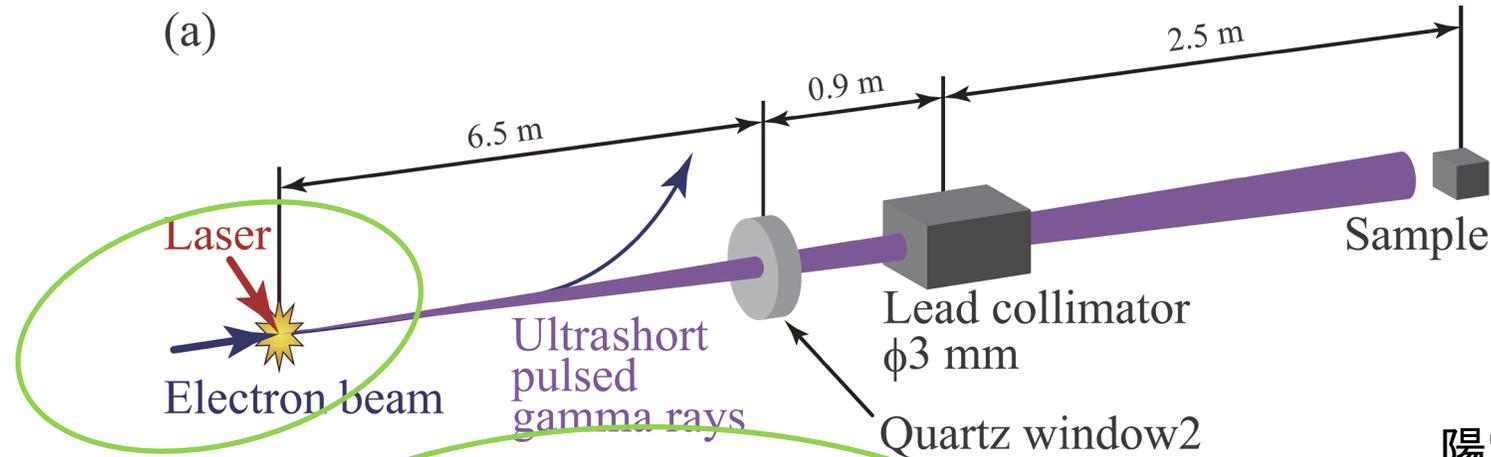
SPF装置配置図



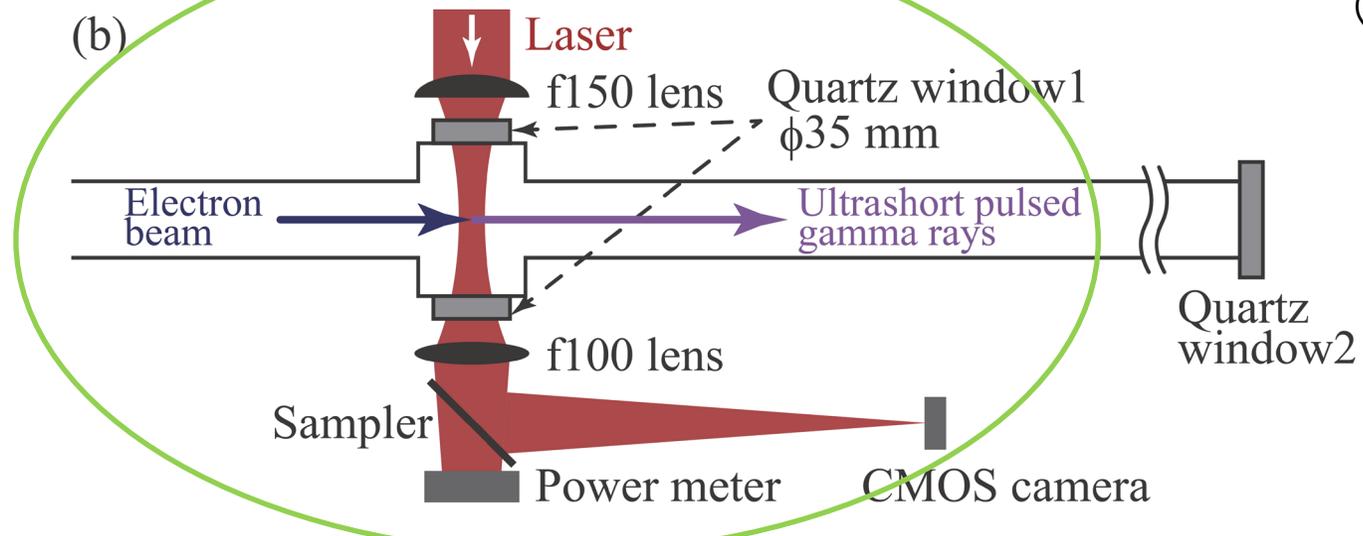
20230401 現在

逆レーザー・トムソン散乱による陽電子生成

UVSOR (分子科学研究所)



陽電子消滅実験に利用
(陽電子は熱化後に消滅)



Taira, et al., Rev. Sci. Instrum. 93, 113304 (2022)

outline

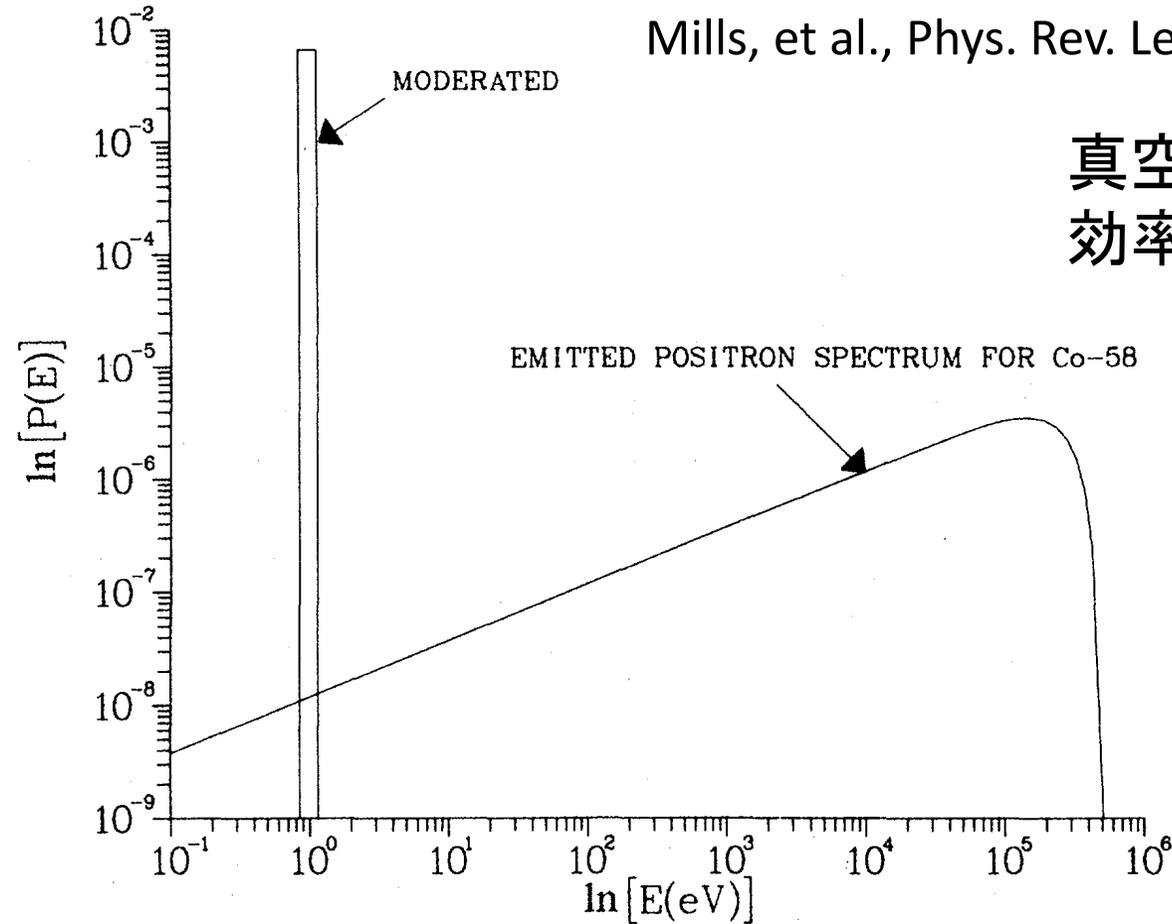
- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 4個の測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

高エネルギー陽電子の低速化

負の陽電子仕事関数の発見

Mills, et al., Phys. Rev. Lett. 41, 1076 (1978)

真空中に低速の陽電子を
効率よく取り出す。



Schultz and Lynn: Rev. Mod. Phys. 60, 701-779 (1988).

高強度陽電子の低速化・輝度増強

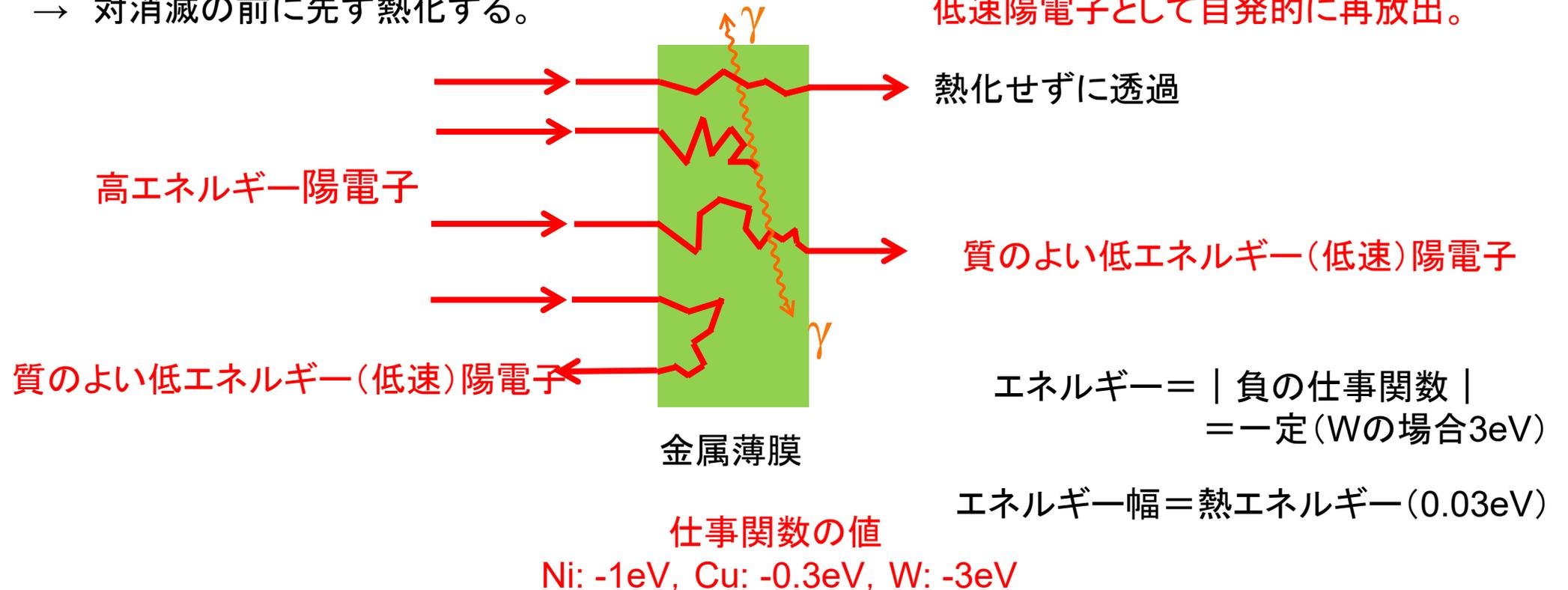
陽電子仕事関数が負の金属薄膜に入射した高エネルギー陽電子

陽電子はなかに対消滅しない。対消滅は熱化後。

原子による散乱過程の断面積 $\sim \pi a_B^2$
対消滅過程の断面積 $\sim \pi a_0^2 \sim \alpha^4 \pi a_B^2 \ll \pi a_B^2$
→ 対消滅の前に先ず熱化する。

わずかながら、対消滅する前に拡散運動で表面に戻ってくる陽電子がある。

→ 陽電子仕事関数が負なら、
低速陽電子として自発的に再放出。



低速陽電子ビームの再減速による輝度増強(回折には必須)

$$\text{輝度 } B = \frac{I}{d^2 \theta^2 E} \quad (\sim 1000 \text{ 倍増強})$$

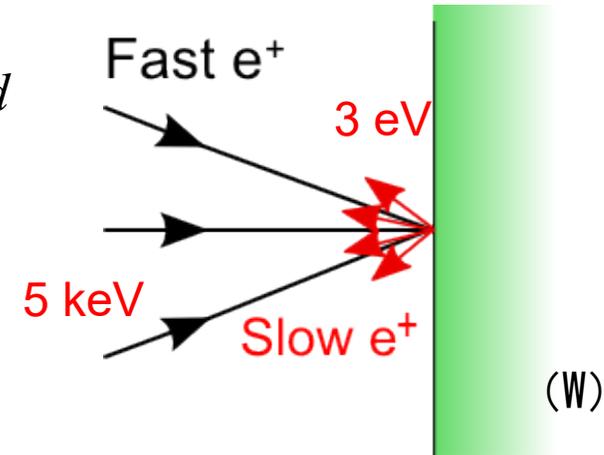
ビーム強度 $I \rightarrow I/10$, ビーム径 $d \rightarrow d$

ビーム発散角 $\sim 50^\circ \rightarrow \sim 10^\circ$

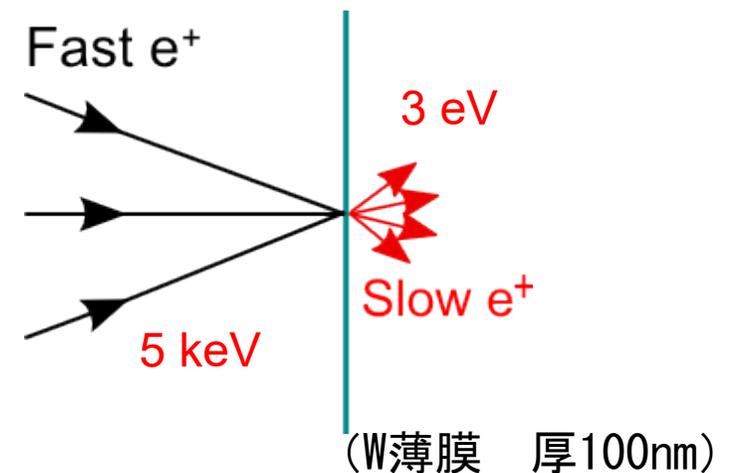
ビームエネルギー $5 \text{ keV} \rightarrow 3 \text{ eV}$

- ・電磁場の力では輝度は改善できない。
- ・電磁場で加速して絞り、仕事関数が負の金属(W, Ni, Cu等)の1点に入射。
- ・空間的に絞られたまま、非保存的にエネルギーが低くなった陽電子が、同じ1点から再放出。
- ・加速エネルギー10kV以下であれば、10%以上表面に戻ってくる。
- ・強度は低下するが輝度は大幅に増強。
- ・薄膜を使った透過型再減速材もある。(KEKで利用)

反射型再減速材



透過型再減速材

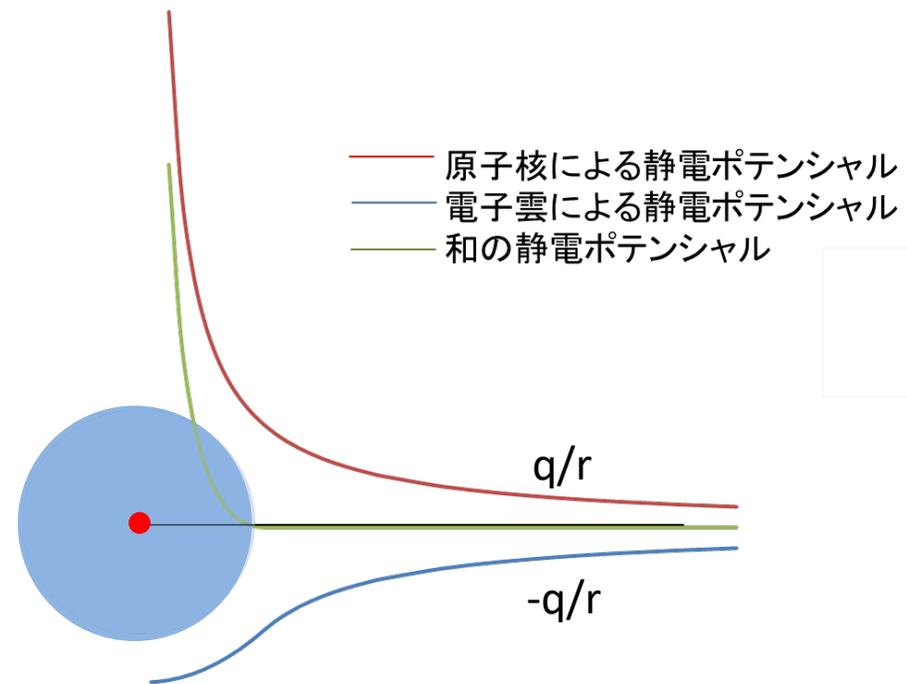
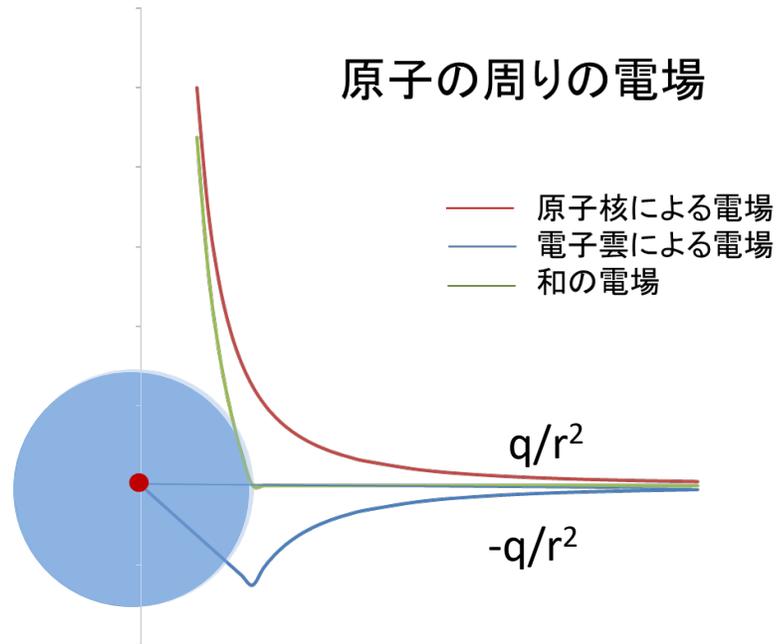


outline

- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 4個の測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

原子の内部の静電ポテンシャルは正 → 全ての物質の内部の静電ポテンシャルは正

原子の周りの静電ポテンシャル

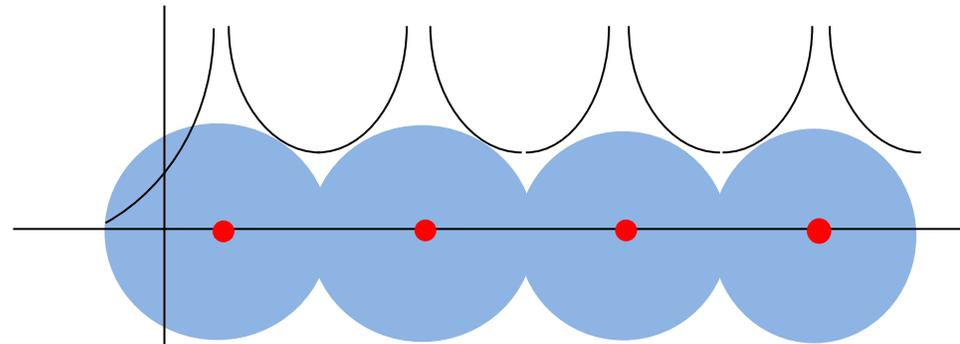


固体中の静電ポテンシャルは**正**

→ **電子**は引き込まれる。

陽電子は排斥される。

→ 陽電子は表面に敏感

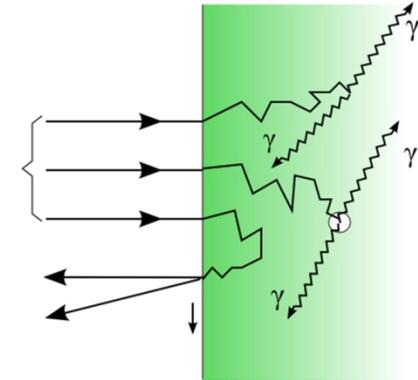


結晶ポテンシャルと仕事関数

結晶ポテンシャル: エネルギーの決まった荷電粒子が侵入できるかどうかに関係。

仕事関数: 内部の基底状態の粒子が出てこれるかどうかに関係。

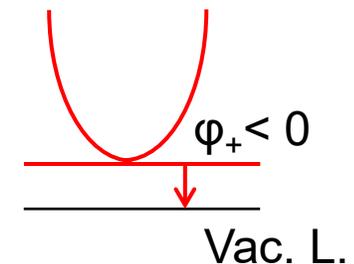
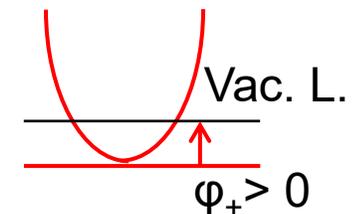
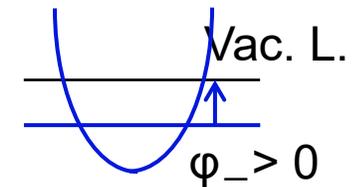
$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + qV \right) \psi = E \psi$$



結晶(静電)ポテンシャル: V (> 0 : 全ての結晶の内部)

ポテンシャルエネルギー: $qV = \begin{cases} -eV (< 0 \text{ 電子}) \\ eV (> 0 \text{ 陽電子}) \end{cases}$

仕事関数: 全ての相互作用を考慮した基底状態に関係
(最もエネルギーの高い状態のエネルギーを真空レベルを基準に測り、符号を変える。)



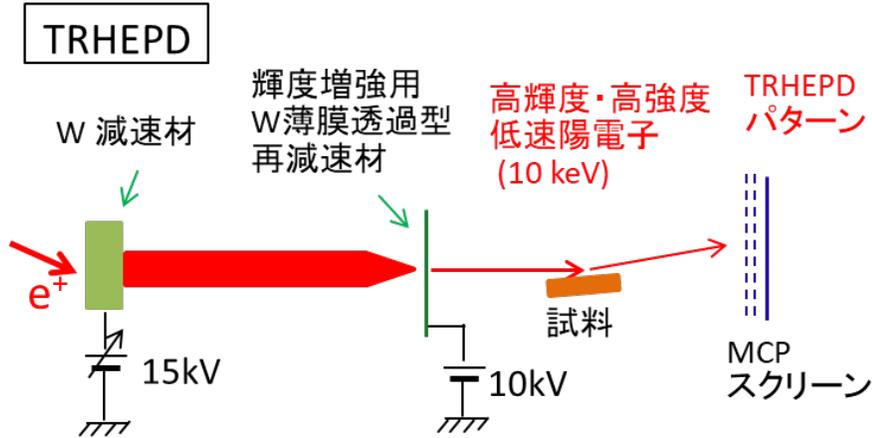
電子の仕事関数 (Vac. L. - フェルミエネルギー) > 0 全ての物質
陽電子の仕事関数 (Vac. L. - 陽電子バンドの底) > 0 多くの物質
 < 0 ある種の金属

outline

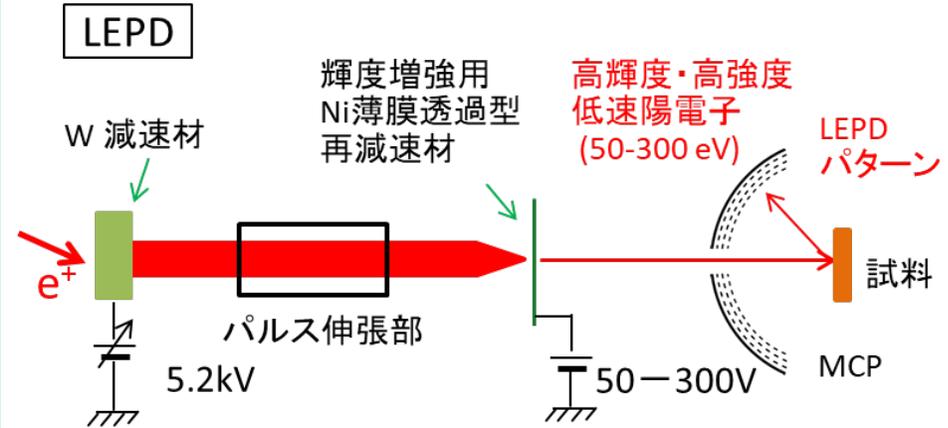
- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- **KEK物構研SPFのビームライン, 測定ステーション**
- ステーションSPF-B1 (汎用ステーション), SPF-B2 (Ps-TOF) における実験
- 回折法による表面構造解析 (表面原子配列解析) の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折 (RHEEDとLEED) と陽電子回折 (TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度 (全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度 (非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション) 開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

4 ビームライン分岐のステーション

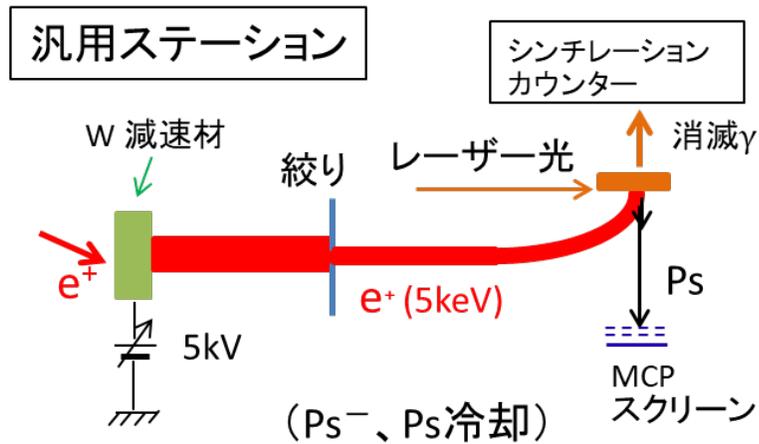
SPF-A3



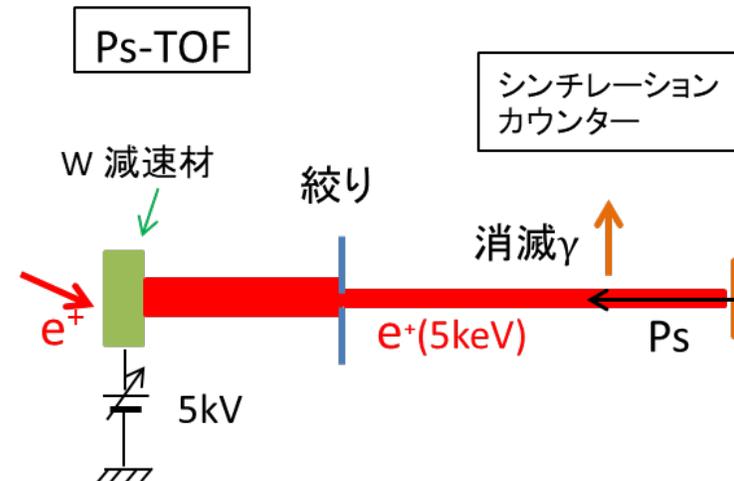
SPF-A4



SPF-B1



SPF-B2



outline

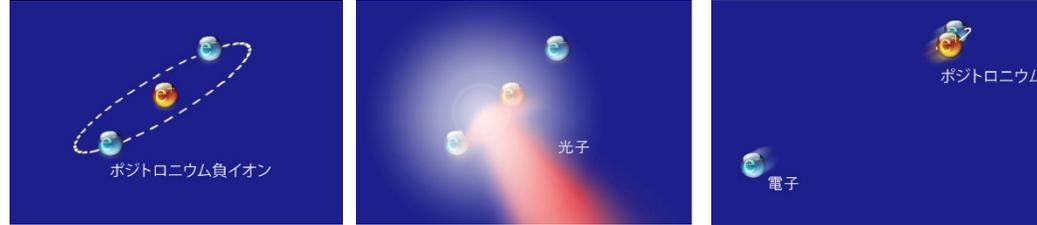
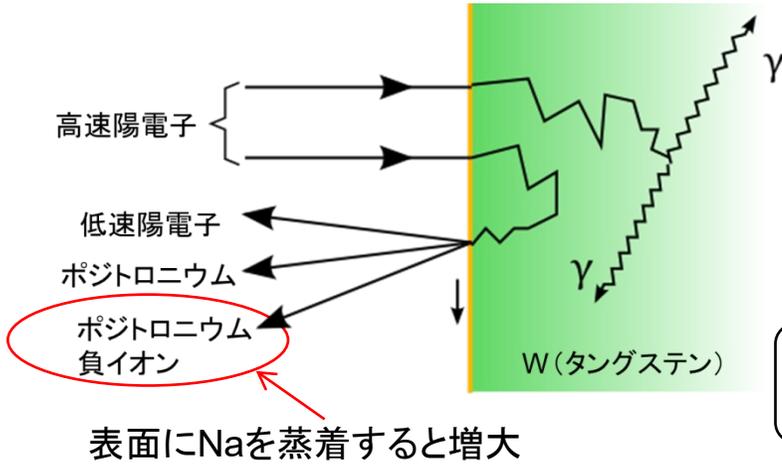
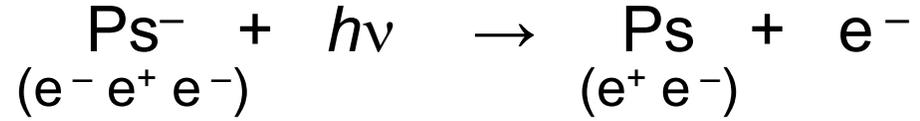
- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFのビームライン, 測定ステーション
- **ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験**
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

ステーションSPF-B1 における実験

- 2017年まで
ポジトロニウム負イオン, ポジトロニウムビーム
- 2018年以降
ポジトロニウムのレーザー冷却

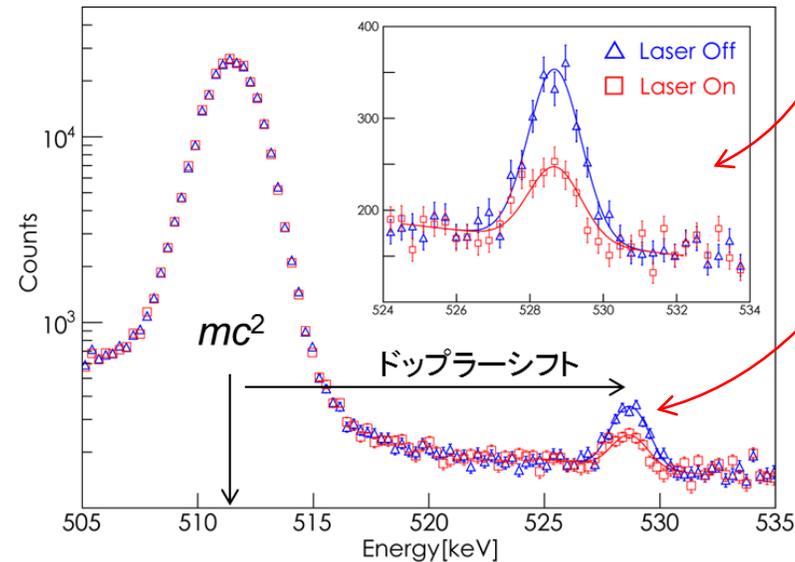
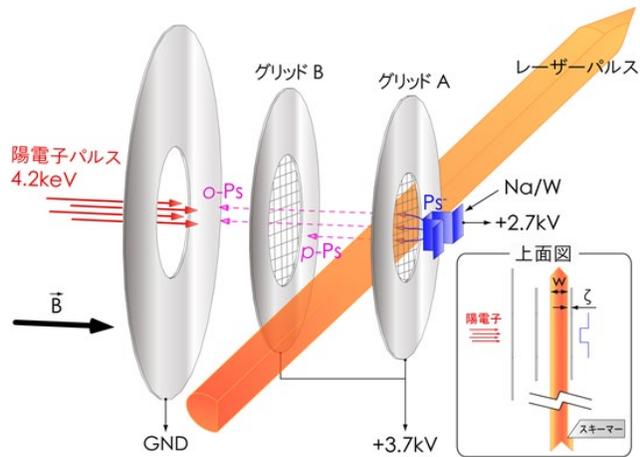
ポジトロニウム負イオンの光脱離

- エネルギー可変 Ps ビームへの第一歩
- 世界初の Ps^- 分光への第一歩



Ps^- の実証: γ 線のドップラーシフトから

光脱離の実証: ドップラーシフトした γ 線ピーク強度のレーザー光照射による減少から

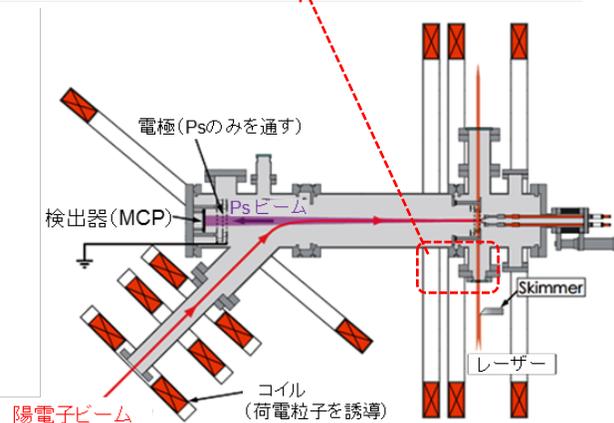
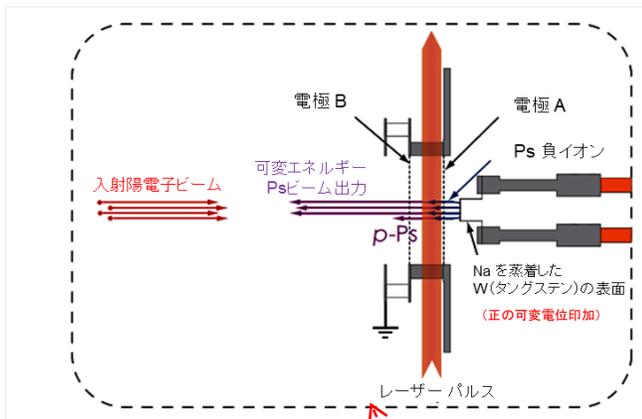
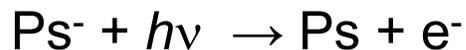
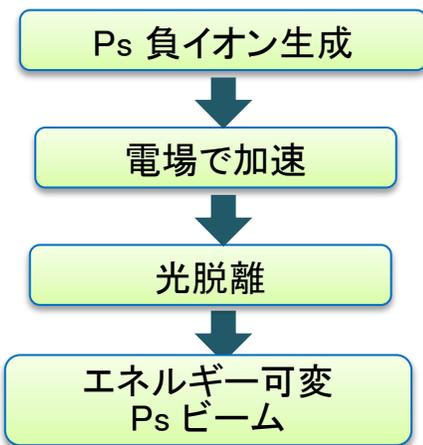


Michishio, et al., Phy. Rev. Lett., 106, 153401 (2011)

対消滅 γ 線のエネルギースペクトル

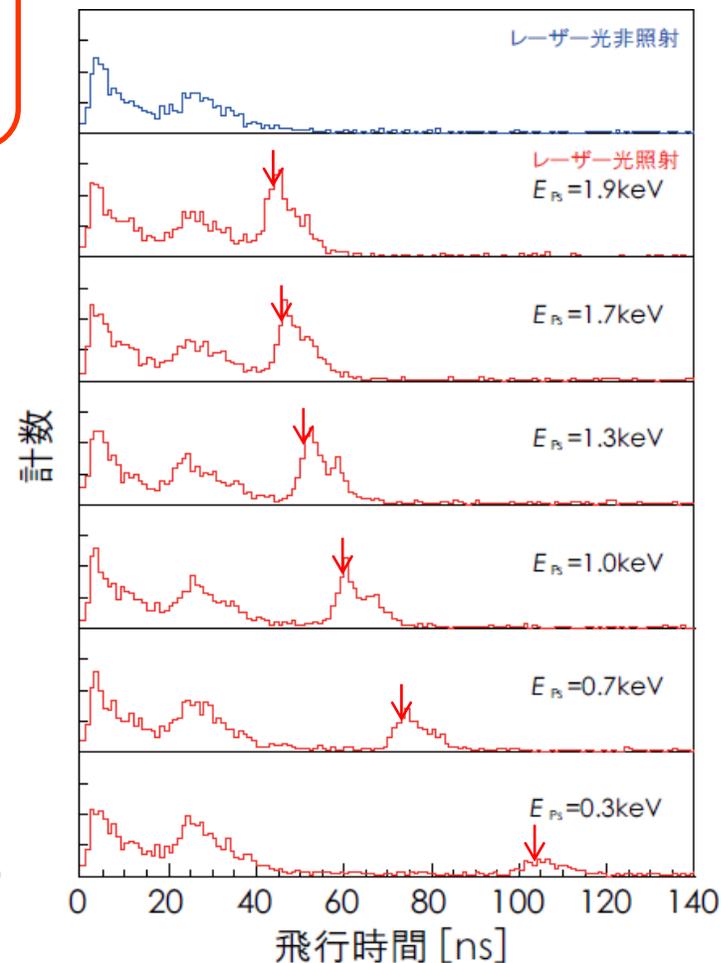
エネルギー可変ポジトロニウムビームの生成

- ポジトロニウム(Ps)は中性 → 電場で加速できない。
- 何とか、エネルギー可変のビームにできないか。
- → Ps負イオン(Ps^-)を作り加速してから光脱離。
(電子を1個はがしてPsにする)



1. 低速陽電子ビームを磁場で45°曲げて誘導し、Na蒸着したW表面に入射。
2. W表面からPs 負イオン放出。
3. 電場で望むエネルギーに加速。
4. レーザー光を当て、光脱離により中性のPsにする。
5. Psビームはそのまま直進してMCPで検出される。
6. 飛行時間からPsエネルギーがわかる。
7. 電子、陽電子、イオンなどの荷電粒子は磁場に沿って45°曲がって上流(左下)に戻るので、邪魔にならない。

Ps ビームの飛行時間データ



加速が少ないほど時間がかかっている。
→ 可変エネルギーPsビームができています。

Michishio, et al., *Appl. Phys. Lett.* 100, 254102 (2012).

プレスリリース <http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20120620140000/>

Ps負イオン光脱離過程における共鳴状態

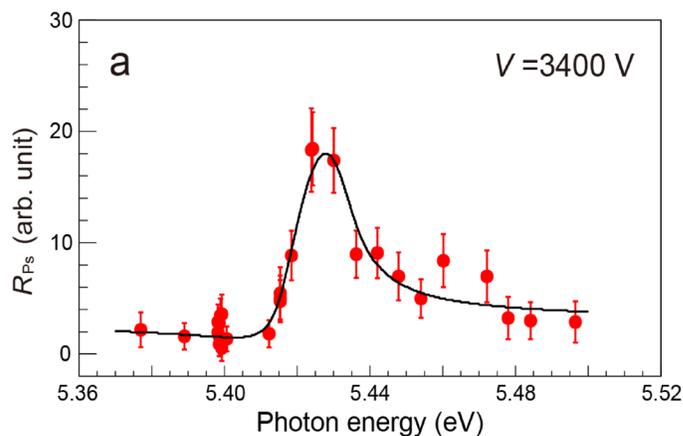
Ps負イオンの、初めての本格的な分光実験に成功
KEK 高強度低速陽電子パルスと、高強度色素パルスレーザーで可能に

共鳴状態を経由する光脱離: 特定の光エネルギー ($h\nu$) の時に起きる。

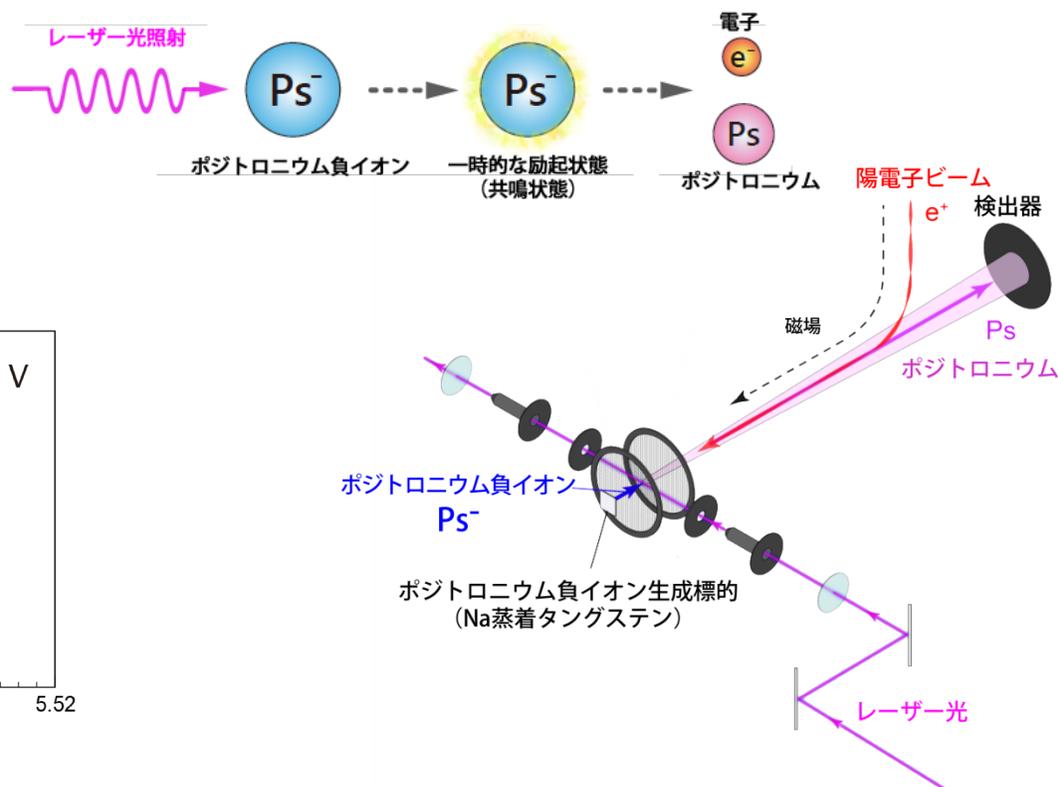


ポジトロニウム (Ps)
「粒子-反粒子系」

ポジトロニウム負イオン (Ps^-)
「粒子-反粒子三体系」
寿命 0.5 ナノ秒で消滅



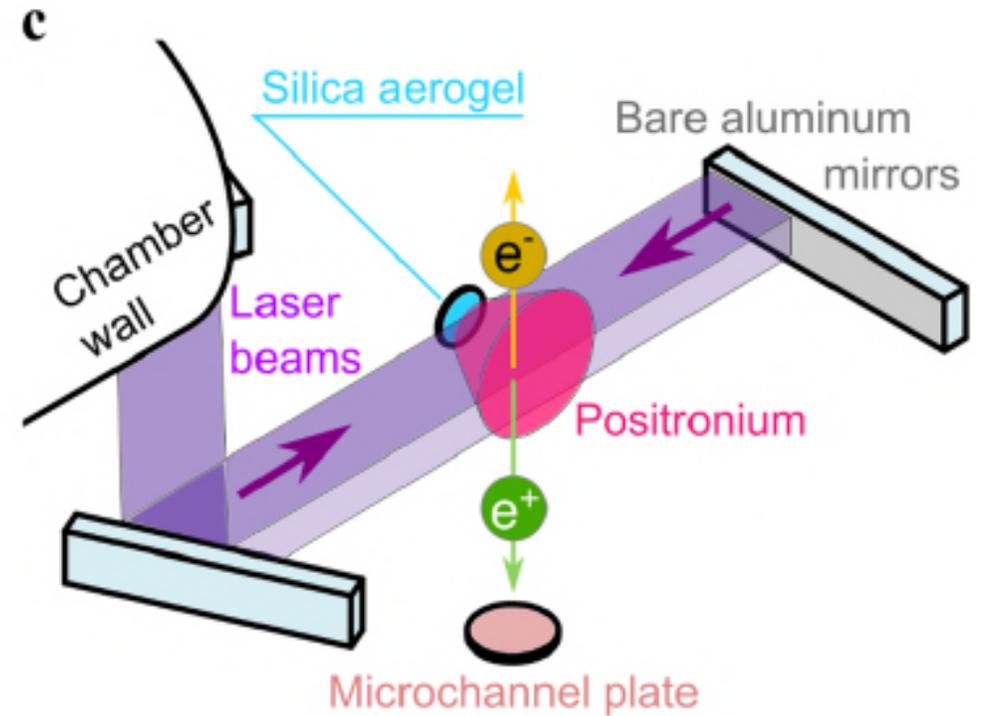
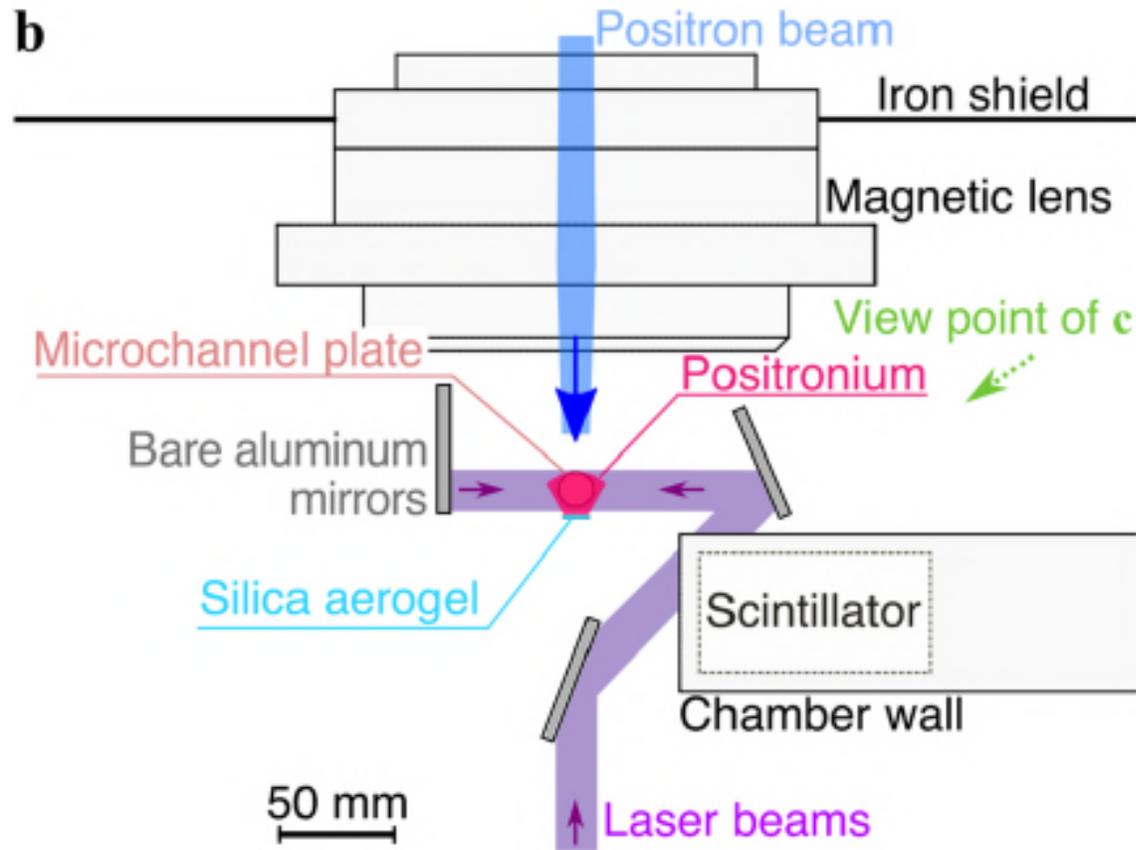
ポジトロニウム負イオンの共鳴の観測



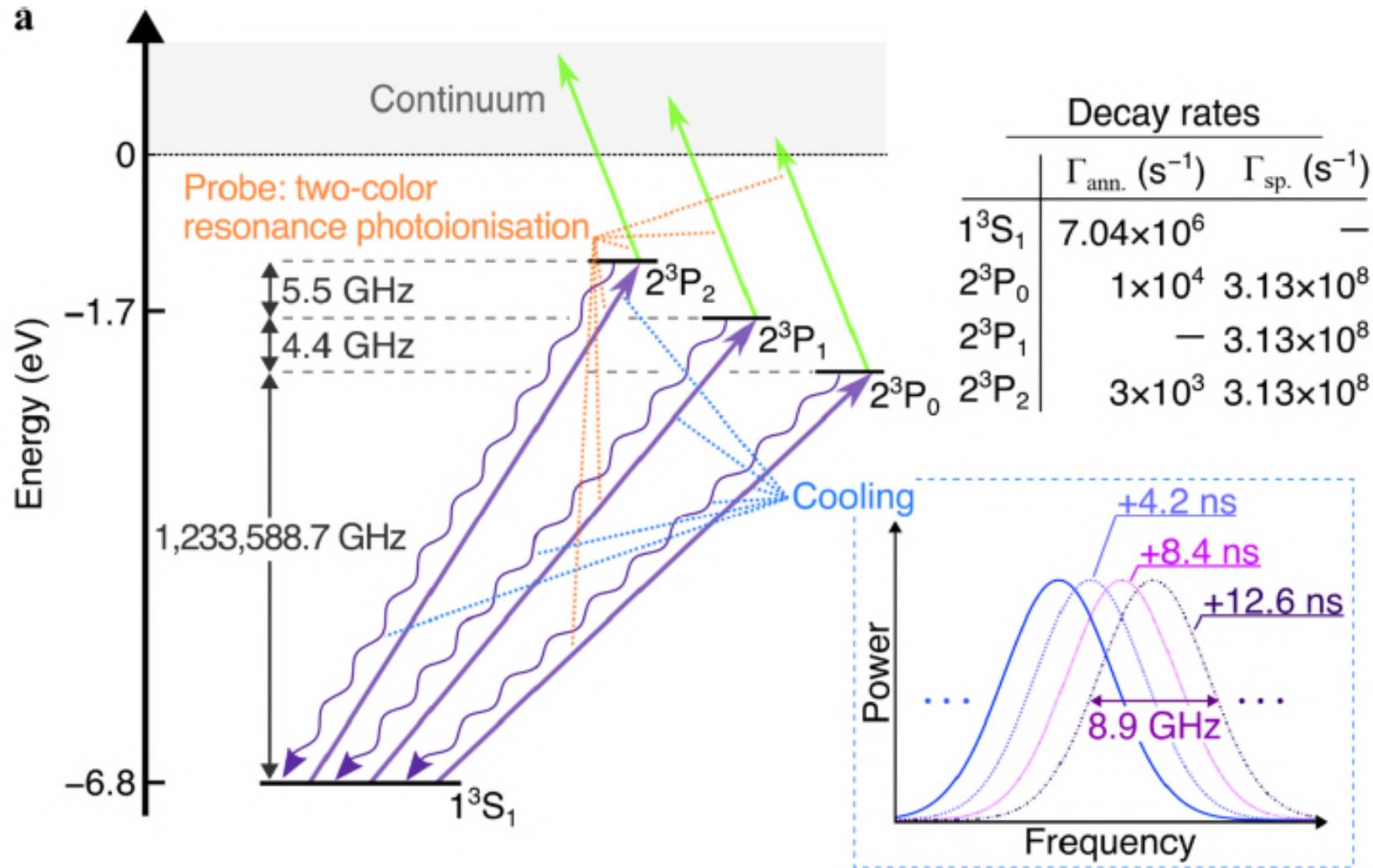
Michishio et al., *Nature Commun.* 7, 11060.(2016).

プレスリリース <http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20160318103000/>

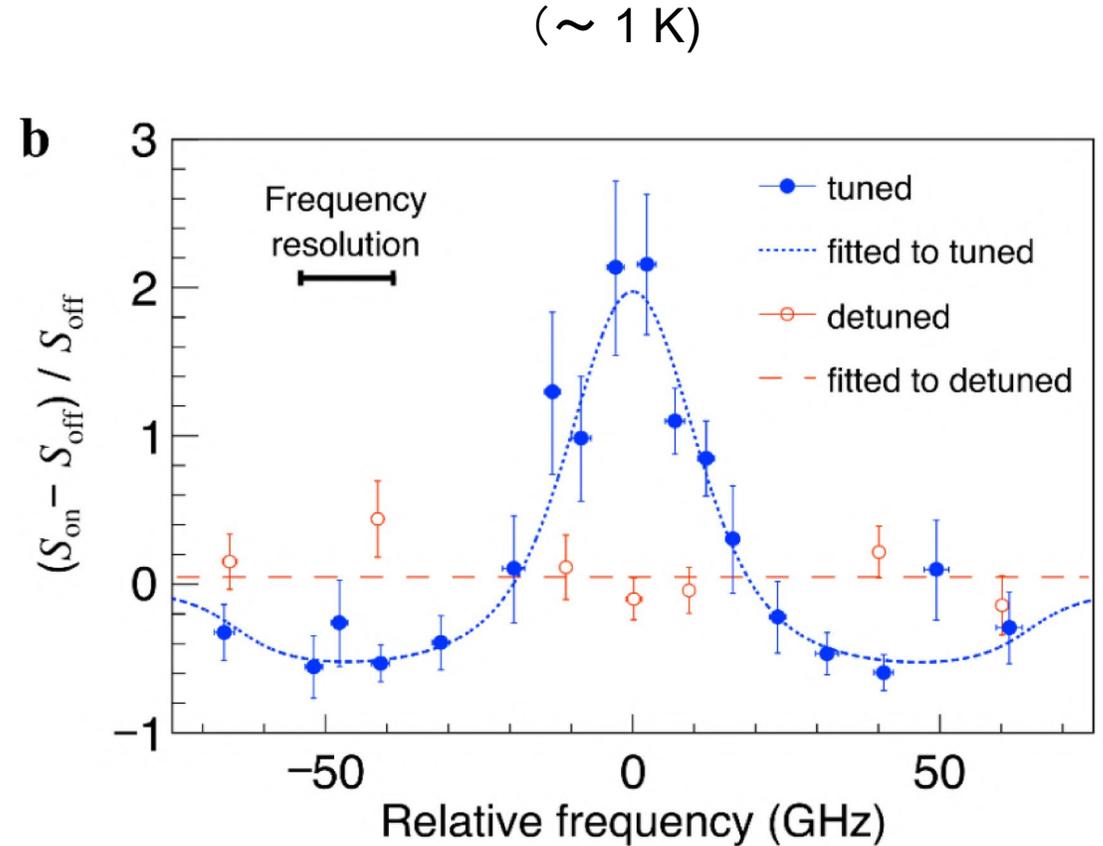
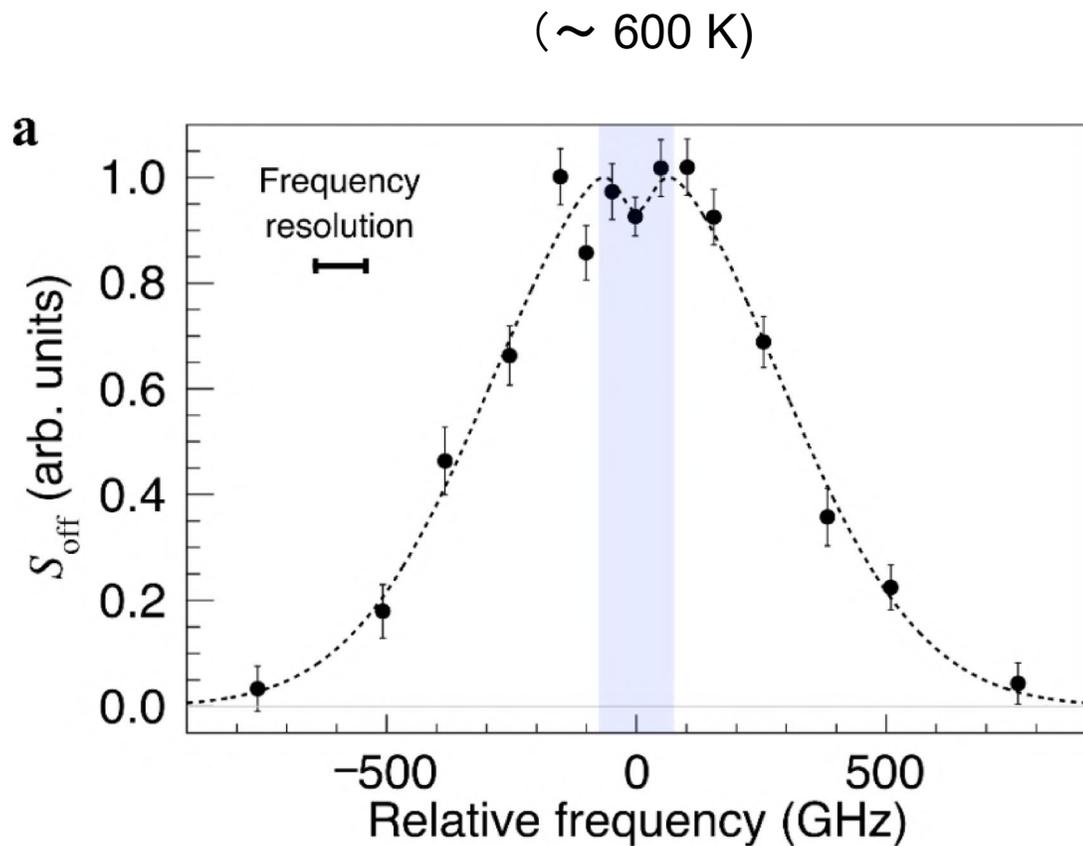
Ps レーザー冷却装置 (一次元冷却)



Ps レーザー冷却に使う準位



Ps レーザー冷却の結果 (1次元冷却)



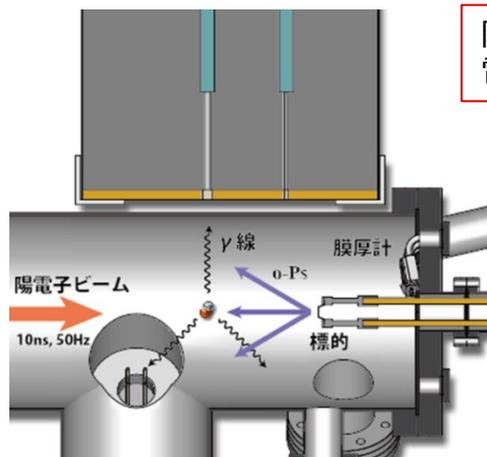
SPF-B2: Ps飛行時間法による2次元自由電子層の研究

W表面にアルカリ金属を蒸着すると、Ps負イオン放出増大
Ps放出はどうか。 → 大幅に増大した。

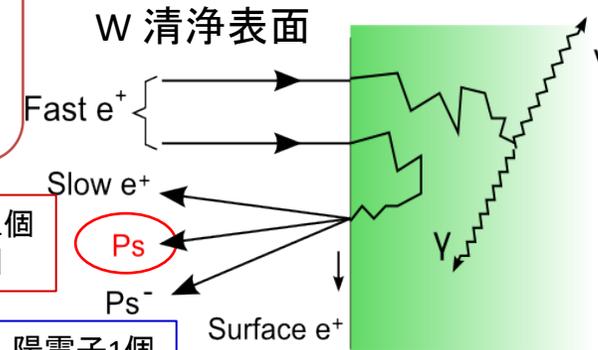
→ 陽電子と表面2次元自由電子層の相互作用の研究に着手
増大理由の解明と放出エネルギースペクトルの解釈

Ps飛行時間法 (Ps-TOF)

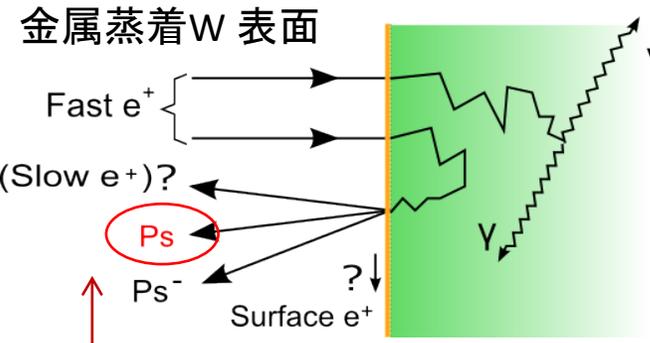
- パルス陽電子を表面に入射。
- 放出された *o*-Ps が飛行中に自己消滅して生じた γ 線を試料から一定距離だけ離れた位置で検出。
- 入射時刻と γ 線検出時刻の隔から、Psの速さ、したがって運動エネルギーを知る。



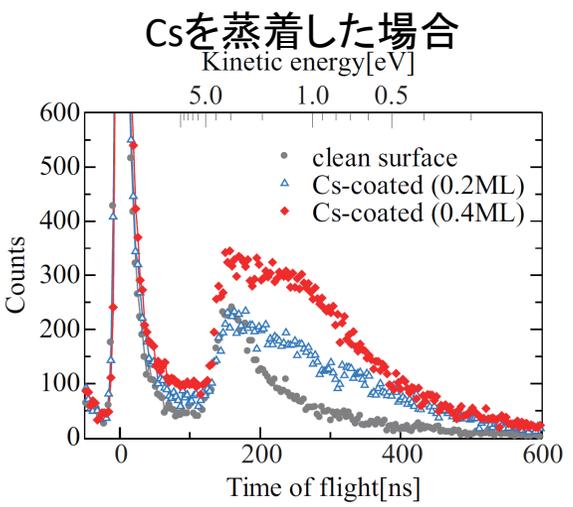
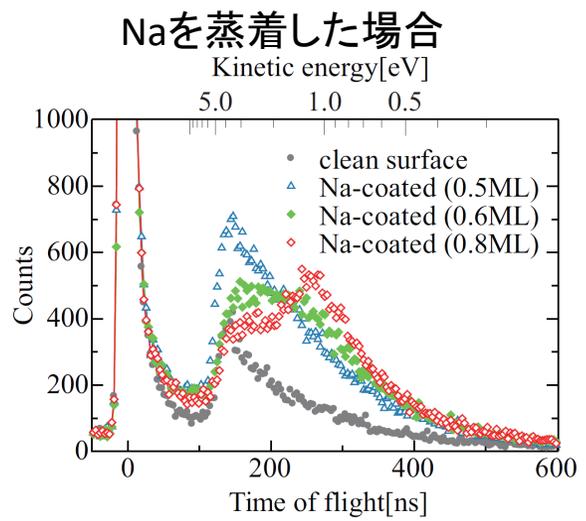
陽電子1個
電子1個



陽電子1個
電子2個



大幅増大:
金属表面の自由電子層に対するプローブ



Terabe et al., Surf. Sci. 641, 68 (2015)
Iida et al., J. Phys. Condens. Matter 28, 475002 (2016)

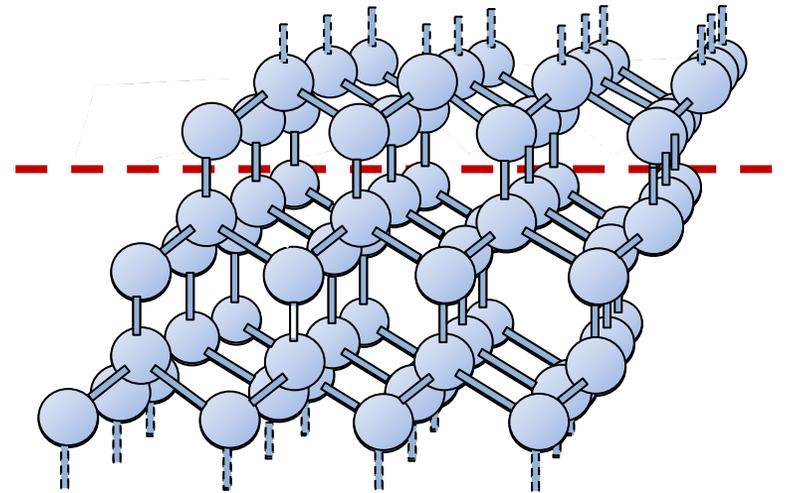
OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

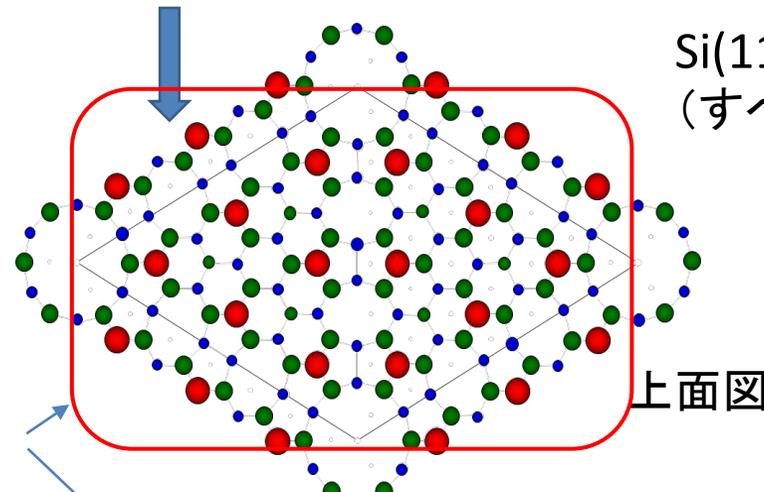
結晶表面は、結晶をある面で切断したままとは異なる

- 結晶表面は内部と違う。
- 結晶をある面で切ったままでは不安定。
 - 表面原子の再配列
 - 原子の一部が蒸発
 - 調べなければ詳細不明。
- 新規機能開発のために異原子を蒸着することもある。
 - 付着の詳細は調べなければ不明。

Si(111) 表面の例

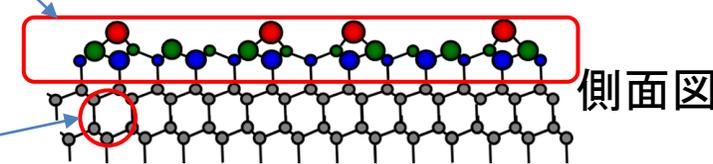


Si(111)7x7 面
(すべてSi 原子)



上面図

表面原子配列
の単位胞



側面図

バルク(結晶内部)
の単位胞

量子ビーム回折による原子配列の決定

- 測定で得られるのは**回折パターン**からは、**原子配列の対称性**がわかる。
 - 既知の試料の作製や方位決定に広く用いられる。
- 回折パターンから**詳細な原子配列**を決めるには、正確な**スポットの強度**が必要。
- 実験データの相対強度を**具体的な原子配列に対する理論計算**と比較。
 - **理論の正確さ**が求められる。
 - 正確でない理論を使うと、間違った原子配列を最適解としかねない。
- 物質との**相互作用が強い**電子や陽電子の場合は**多重散乱**を考慮した理論（**動力学的理論**）が必要。
- 利用する理論は散乱理論のみなので、**第1原理計算とは独立**。
 - 相互の比較が可能

バルク(固体内部)と表面原子配列解析

結晶バルクの原子配列解析

- 散乱断面積の小さい(物質透過力の大きい)量子ビームが望ましい。
- 散乱断面積が小さくても、バルクには多くの原子が存在するので十分な回折強度。
- 1回の弾性散乱のみで回折スポット形成。
- 理論が単純(運動学的理論)。
- 光子(X線), 中性子

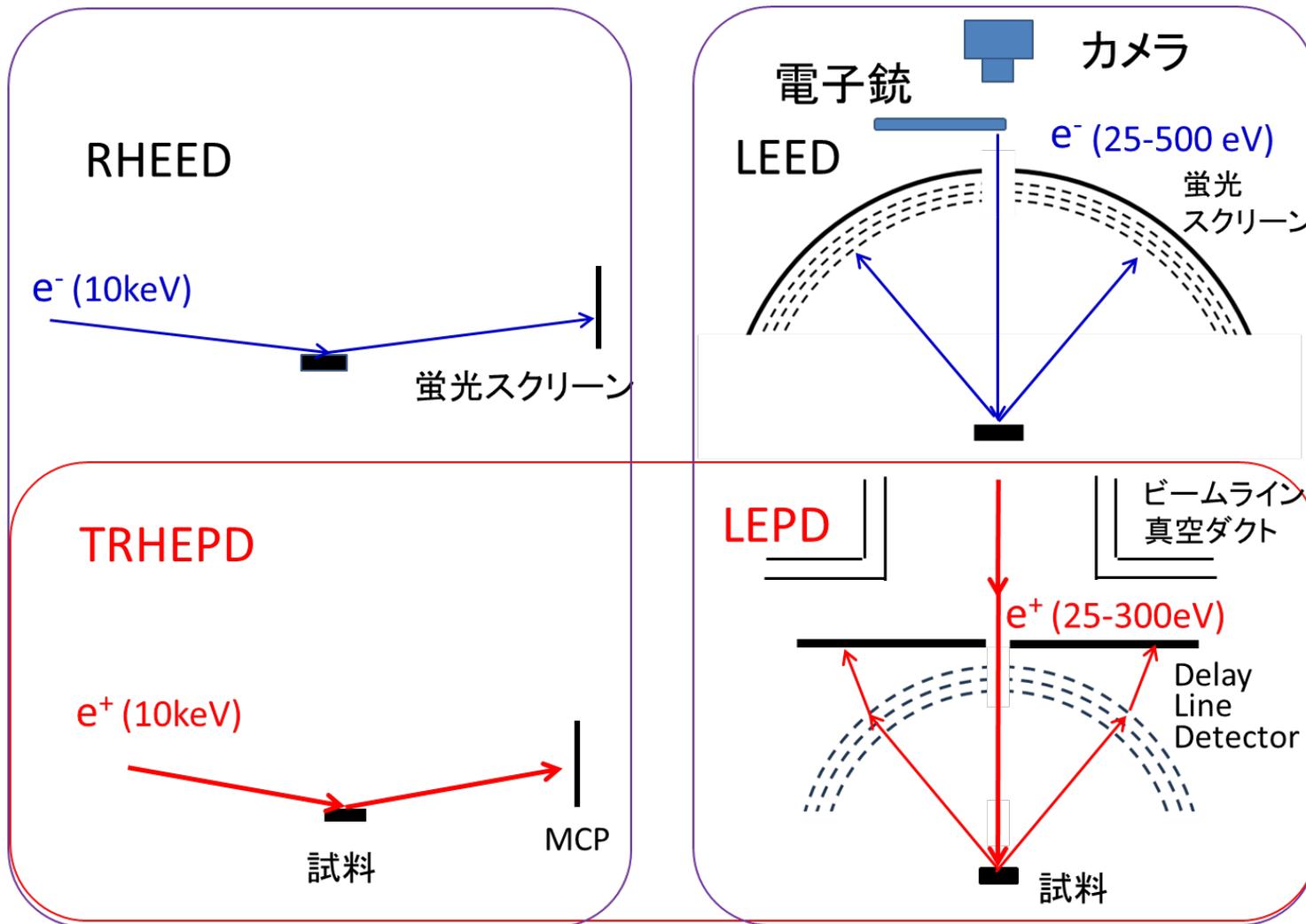
結晶表面の原子配列解析

- 非弾性散乱断面積が大きい量子ビームが表面感度大。
 - ← 一度でも非弾性散乱をした粒子は回折スポットに寄与しない。
- 弾性散乱断面積の大きい(物質透過力の小さい)量子ビームが回折強度大。
 - ← 非弾性散乱で決まる表面層の原子は数が少ないが、散乱断面積が大きければ観測可能。
- ただし、多重散乱のため理論複雑(動力学的理論)
- 電子, 陽電子

OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと, 陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

電子回折と陽電子回折(各2種類)



これらはすべて反射型。

この他に100keV程度の電子線と薄膜試料を用いる透過型の電子回折法もある。

(陽)電子回折

- 低速電子回折 (Low-energy electron diffraction, LEED)
- 低速陽電子回折 (Low-energy positron diffraction, LEPD, レプト)
- 反射高速電子回折 (Reflection high-energy electron diffraction, RHEED)
- 全反射高速陽電子回折 (Total-reflection high-energy positron diffraction, TRHEPD, トレプト)

- (陽電子)のエネルギーと波長の関係 $\lambda/\text{nm} = \frac{12}{\sqrt{E/\text{eV}}}$

結晶ポテンシャルのため、物質中の波長は電子は短くなり、陽電子は長くなる。

- Bragg 条件 $2d\sin\theta = n\lambda$ λ は物質内での波長

- LEED, LEPD $E = 100\text{V} \rightarrow \lambda = 1.2 \text{ nm} \sim d$

$E = 20 - 300 \text{ eV}$ の範囲で、スポット強度のE依存性 $I(E)$ を測定

- RHEED, TRHEPD $E = 10 \text{ keV} \rightarrow \lambda = 0.012 \text{ nm} \ll d$

- $E = 10 \text{ keV}$ に固定して、00スポット(鏡面反射)の視射角 θ 依存性 $I(\theta)$ を測定

OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

一宮 彪彦, 日本物理学会誌 **70**, 683 (2015).

- 1927年に電子回折発見
 - Davisson and Germer, Phys. Rev. 30, 705 (1927) → LEED
 - Thomson, Proc. Roy. Soc. A117, 600 (1928) → TED
 - Nishikawa and Kikuchi, Nature 121, 1019 (1928) → RHEED
- RHEEDによる原子配列解析に使える動力学的理論
 - Maksym and Beeby, Surf. Sci. 110, 423 (1981)
 - Ichimiya, Jpn. J. Appl. Phys. 22, 176 (1983), ibid. 24,1363 (1985)
- RHEEDの原子配列解析への応用
 - Horio and Ichimiya, 133, 393 (1983)
- RHEPDの提案
 - A. Ichimiya, Solid State Phenom. **28**, 143 (1992).

RHEED と TRHEPD の歴史(2)

- (T)RHEPD の実証
 - A. Kawasuso and S. Okada, Phys. Rev. Lett. **81**, 2695 (1998).
- 2010まで: 原子力機構(現QST)高崎研究所(^{22}Na 陽電子源)
 - 本日の講演に含まれない多くの優れた成果
 - Fukaya et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 52, 013002 (2019).
- 2010より: KEK物質構造科学研究所(加速器利用陽電子源)
- 2014年頃: RHEPD を TRHEPD と改称(内容や使い方は同じ)
 - Total-reflection high energy positron diffraction
- 最近ドイツにもTRHEPD装置完成(ミュンヘン工科大学)
 - 研究用原子炉施設 FRMII の 低速陽電子施設 NEPOMUC
 - Dodenhöft 他, Phys. Rev. B 108, 155438 (2023).
- 日本が世界に先行している理由
 - 電子回折研究の伝統
 - 表面研究者・加速器研究者・陽電子研究者・計算科学者の協調

RHEED と TRHEPD の回折強度理論 (ほぼ共通) の概要

$$-\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2\psi(\mathbf{r}) + U(\mathbf{r})\psi(\mathbf{r}) = E\psi(\mathbf{r})$$

$$U(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} U_{\mathbf{g}}(z) \exp(i\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_t)$$

$$\psi(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{g}} c_{\mathbf{g}}(z) \exp[i(\mathbf{k}_{0t} + \mathbf{g}) \cdot \mathbf{r}_t]$$

$$\mathbf{r} = \mathbf{z} + \mathbf{r}_t, \quad \mathbf{k}_0 = \mathbf{k}_{0z} + \mathbf{k}_{0t}$$

$$U = U^{\text{elastic}} + i(U^{\text{TDS}} + U^{\text{el}} + U^{\text{pl}})$$

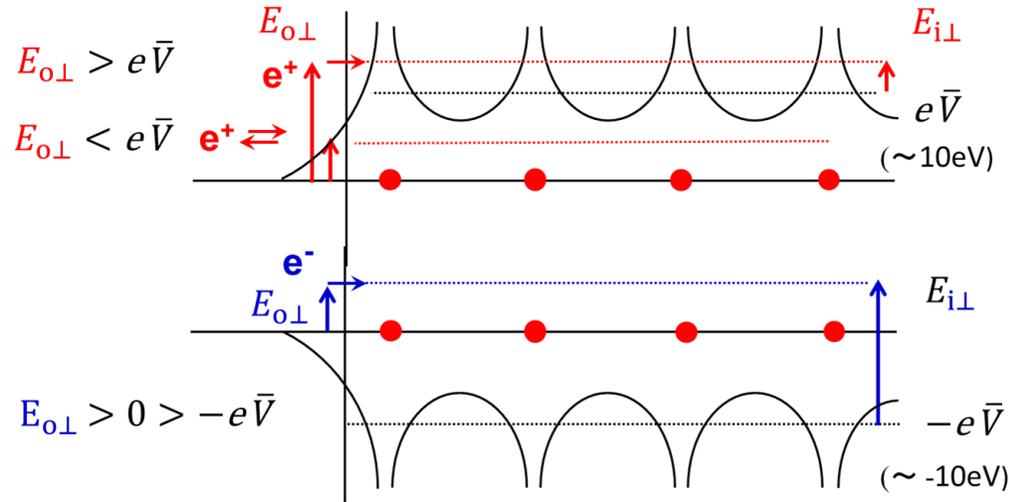
$$U_{\mathbf{g}}^{\text{elastic}} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{4\pi}{\Omega_0} \sum_{j(\text{unit cell})} \exp(i\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}_j) f(s) \exp(-Bs^2), \quad \mathbf{s} = \mathbf{g}/4\pi$$

$f(s)$: 原子の弾性散乱因子 ← 孤立原子の電荷分布で決まる。

入射電子エネルギーが ~ 10 keV の **RHEED** では、物質電子との相関効果や交換効果は無視できる。→ 入射粒子の電荷の符号を変えるだけで、そのまま **TRHEPD** に使える。

ただし、ポテンシャルの虚数部分は、フィッティング・パラメタのひとつとして扱う。

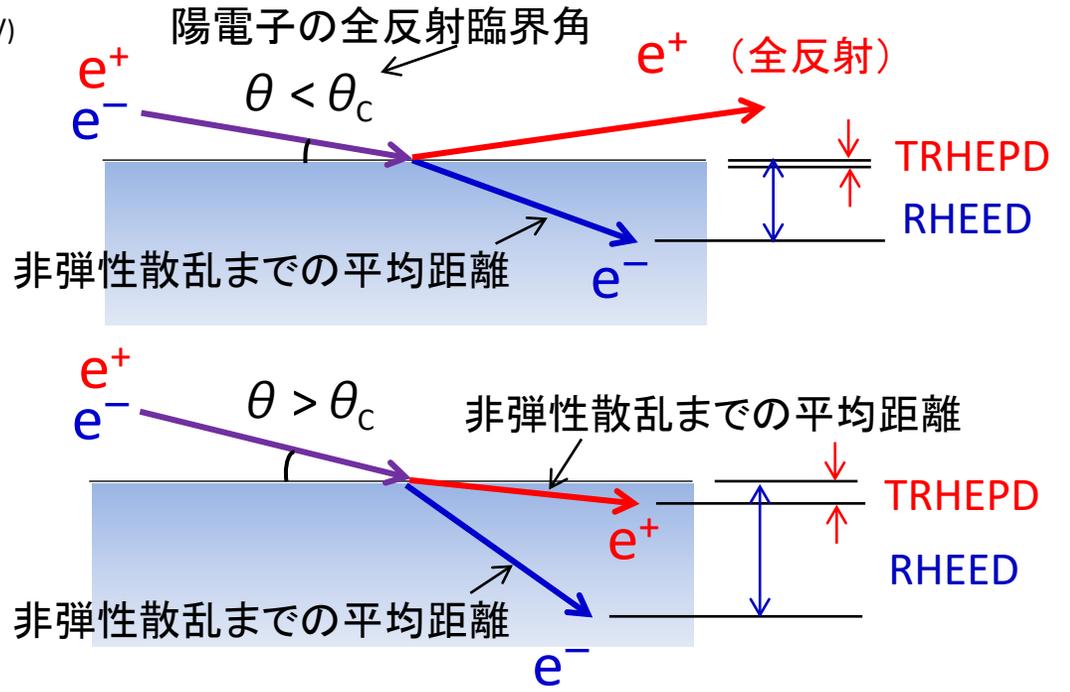
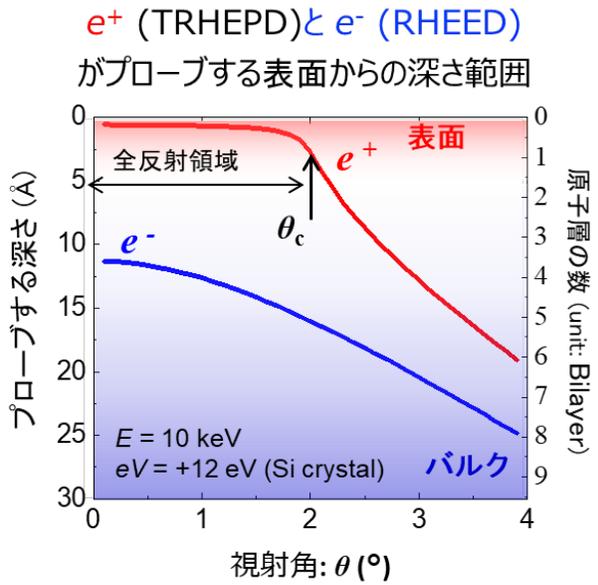
TRHEPD と RHEED の表面感度



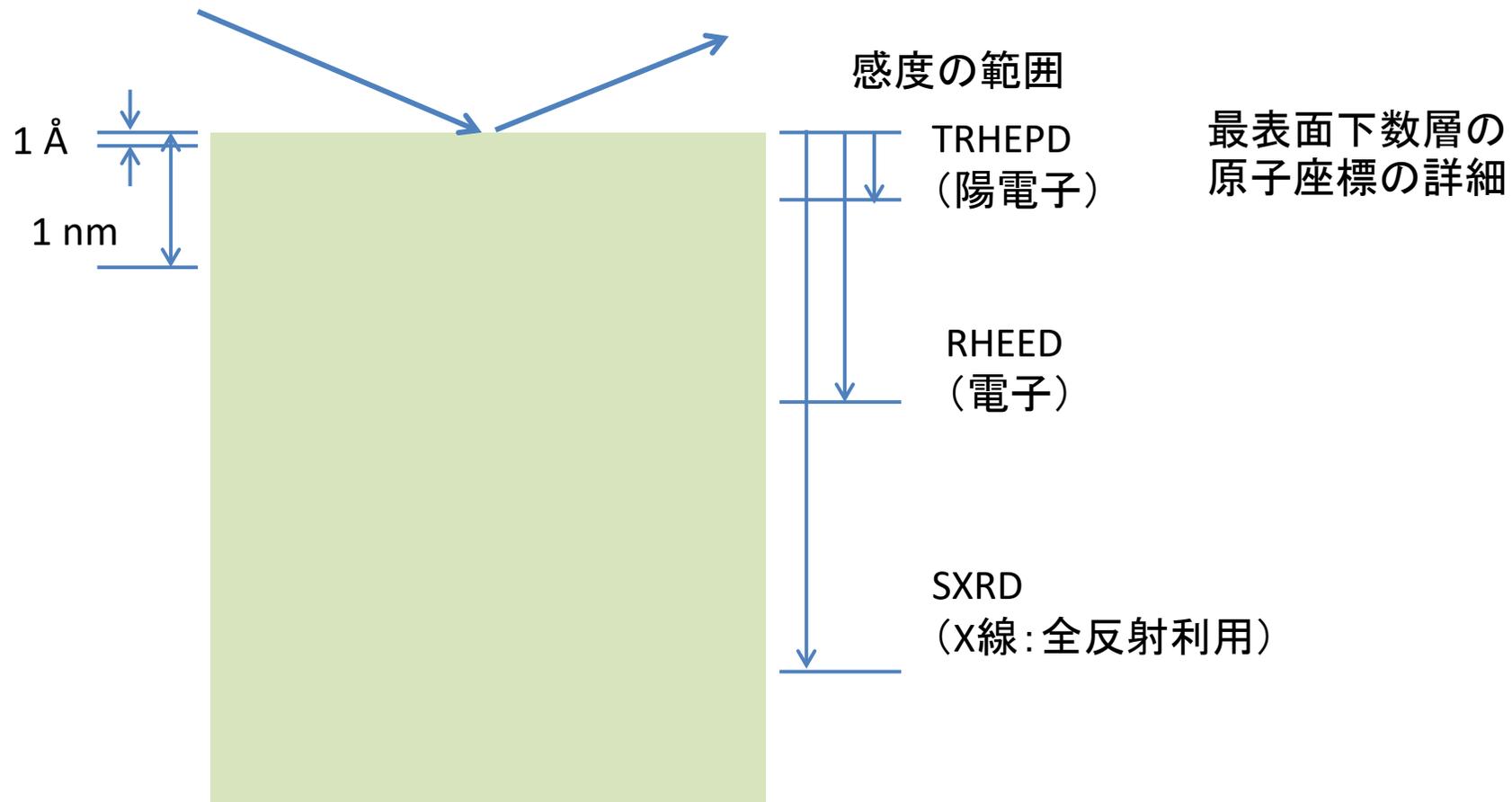
$$E_0 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} = \frac{\hbar^2 k_{0\parallel}^2}{2m} + \frac{\hbar^2 k_{0\perp}^2}{2m} = E_{0\parallel} + E_{0\perp}$$

$$k_{0\perp} = k_0 \sin\theta$$

$$E_{0\perp} = E_0 \sin^2\theta$$



表面すれすれ入射の陽電子・電子・X線(全反射)の深さ感度



OUTLINE

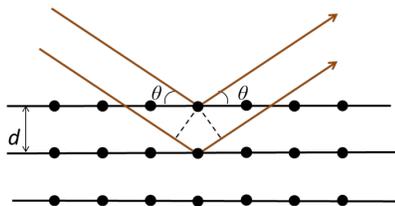
- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと, 陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- **ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ**
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

TRHEPDによる原子座標決定の流れ

- ◆ 原理:
 - 原子配列を知りたい表面に陽電子を入射→陽電子と表面原子の相互作用→TRHEPDパターン
- ◆ 実験: THEPD測定ステーション
 - TRHEPDパターンを測定 (00)スポットの視射角依存性 (ロッキング曲線)を抽出
- ◆ 解析: 計算機
 - 原子の種類と座標を仮定して動力的散乱理論による TRHEPDパターン→特定のスポットのロッキング曲線を計算
- ◆ R因子(理論と実験の差を表すパラメタ)を計算 R因子が小さくなるように原子位置を座標を変えてみる。
 - R因子が極小になるまで探しつづける。

各原子のx, y, z 座標を, 独立に測定

ブラッグの式
 $2d \sin\theta = n\lambda$



TRHEPD

$E = 10 \text{ keV}$

$\lambda = 0.01 \text{ nm} \ll d$

$\sin\theta \ll 1$

ビームに平行な面 =
 ビームに垂直な座標
 にのみ敏感



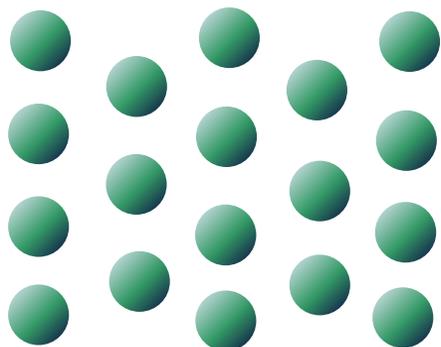
LEPD

$E = 25 \sim 500 \text{ eV}$

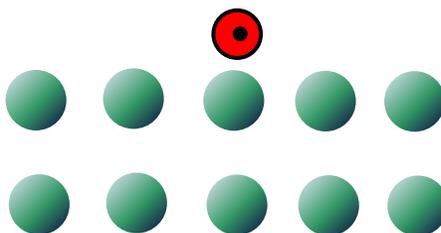
$\lambda \sim 0.1 \text{ nm} \sim d$

すべての面 =
 すべての座標
 に敏感

(a) 多波条件



(x, z 座標)



表面内の、ビームに垂直
 な原子の変位にも敏感

一波条件で決めた座標成分を固定
 座標パラメタを減らして解析

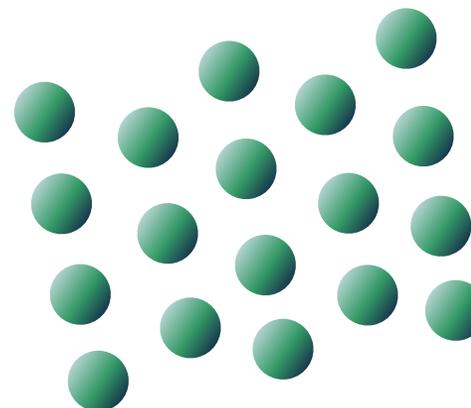
y
 上面図
 X

(y, z 座標)

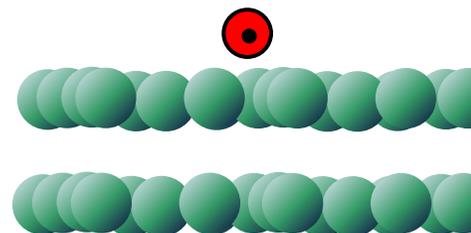
← ビーム入射方向

Z
 側面図
 X

(b) 一波条件



(z座標のみ)



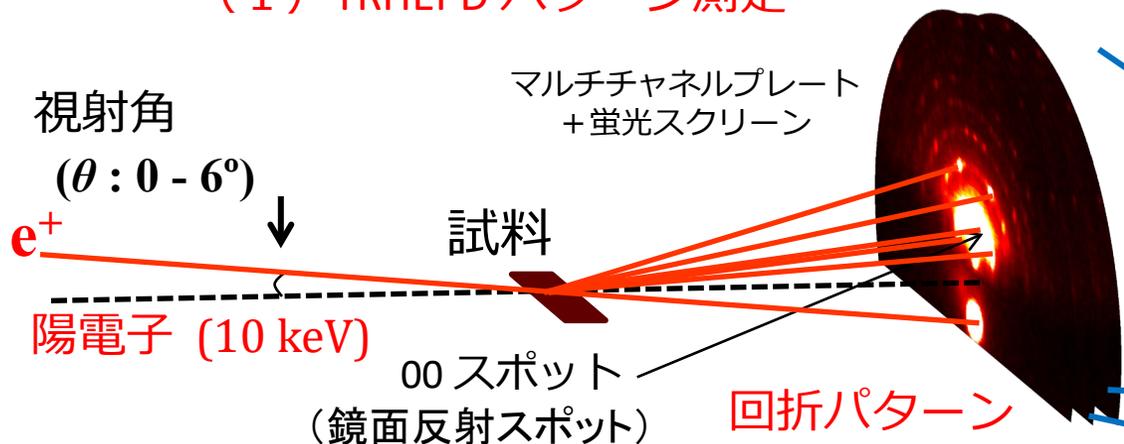
表面に垂直な原子の変位と
 原子数密度にのみ敏感

座標パラメタが一成分のみ
 解析単純

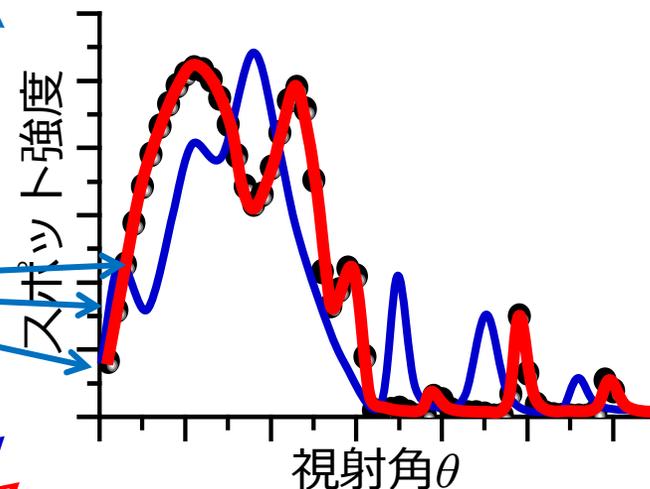


TRHEPDではロッキング曲線を解析して原子座標を決める ロッキング曲線は、鏡面反射スポットの視射角依存性

(1) TRHEPD パターン測定

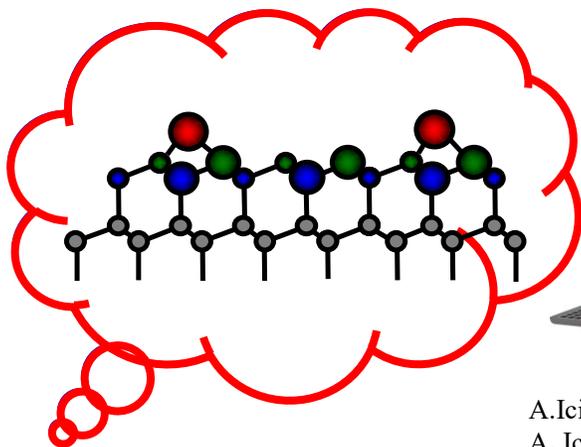


(2) 各 θ で得た回折パターンから 00 スポット強度を抽出



(3) 構造モデルとTRHEPD ロッキング曲線の計算

表面構造モデル



動力学理論による回折
パターンとロッキング
曲線の計算



A. Iicimiya and Cohen: "RHEED" (Cambridge U. P.)
A. Ichimiya, *JJAP* (1983)

(4) 一致の良さをチェック

• R-因子

$$R = \sqrt{\sum_{\theta} (I_{\theta}^{exp} - I_{\theta}^{cal})^2}$$

= 一致がよいほど小さい

$$\sum_{\theta} I_{\theta}^{exp} = \sum_{\theta} I_{\theta}^{cal} = 1$$

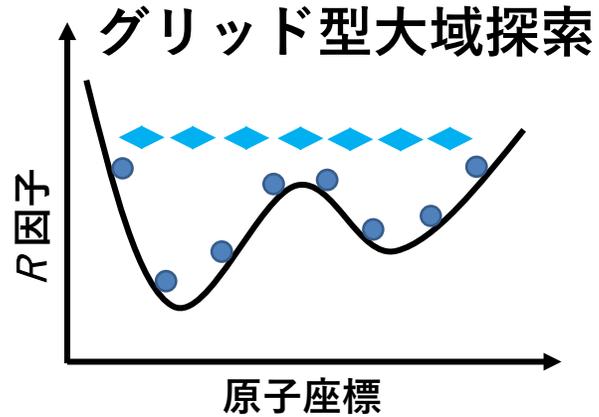
OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所 (IMSS) 低速陽電子実験施設 (SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- **表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入**
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

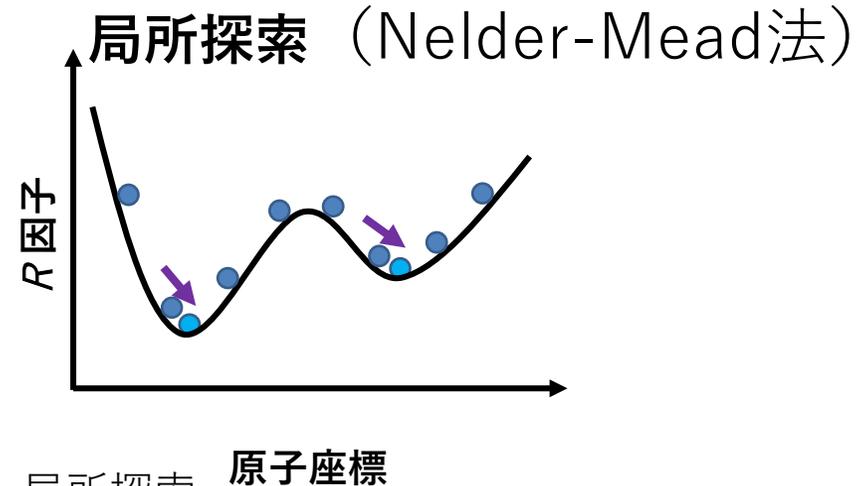
R因子極小の原子配列がR因子絶対最小でない恐れがある

2DMAT導入 ⇒ 絶対最小を保証する

東京大学物性研究所 <https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp/2dmat/>



- (i) グリッド型大域探索
- 一定の間隔で刻んだ原子座標ひとつひとつについて、R因子をしらみつぶしに調べる。
 - ✓ 計算時間が膨大にならない程度の粗いグリッドで計算。



- (ii) 局所探索
- 複数の極小の候補付近で局所的極小をさがす。

(iii) 組合せ探索

- 現実的計算時間のグリッドによる大域探索を行って最適解の候補を選び、各候補について局所探索を行う。
- ✓ 絶対的な最適解を求める。

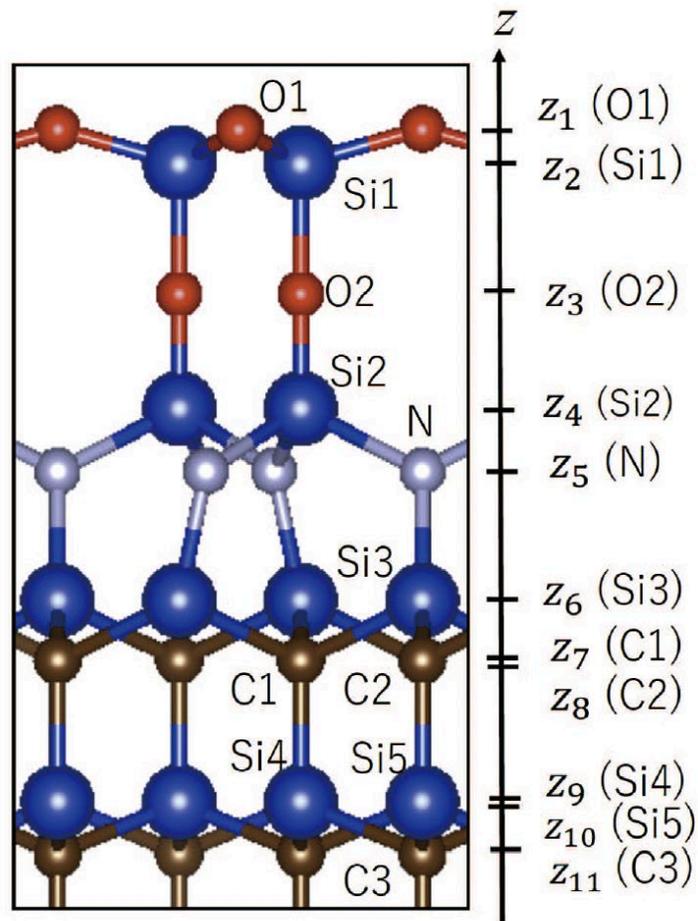
- (iv) 効率的な大域探索：高精度ベイズ推定
直接、絶対的な最適解を求める。



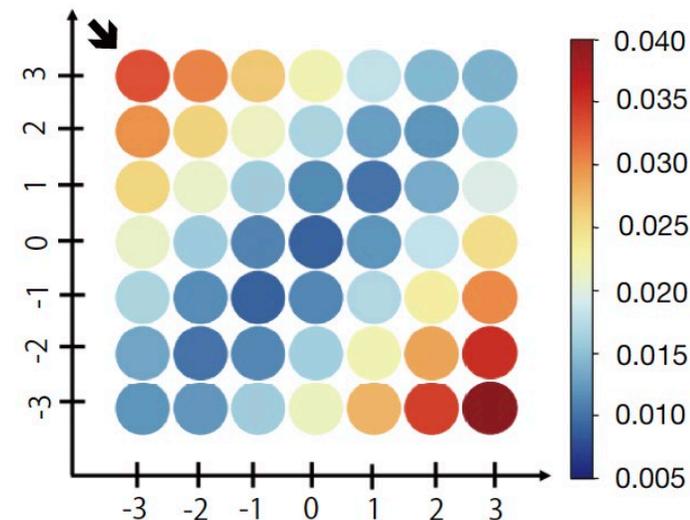
分散共分散行列を用いた感度解析

$\text{Si}_4\text{O}_5\text{N}_3 / 6\text{H-SiC} (0001) - (\sqrt{3} \times \sqrt{3}) \text{R}30^\circ$

実験法由来の不確かさを
定量的・自動的に解析。
✓ TRHEPDの高い表面選択
性を実証。

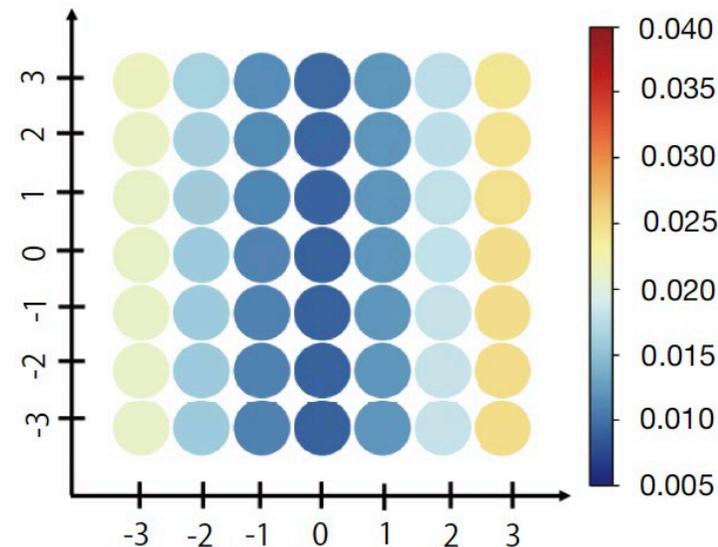


z_2 の最適座標からの
ずれ (0.005 nm単位)



z_1 の最適座標からの
ずれ (0.005 nm単位)

z_8 の最適座標からの
ずれ (0.005 nm単位)



T. Hoshi, et al., Comp. Phys. Comm. 271, 108186 (2022), online (2021).
K. Tanaka, et al., Acta Physica Polonica A 137, 188-192 (2020).

TRHEPDにおける 2DMAT導入の前と後

回折パターンの強度を計算する動力学的散乱理論のプログラムは共通

- 導入前
- 熟練研究者が何か月もかけて試行錯誤で最適原子配列を決めていた。
 - 局所的な最適解に過ぎない可能性を排除できなかった。

-
- 導入後
- 2DMATの出現により、1日で可能に。
 - 大域探索と局所探索の組み合わせや、効率的な大域探索により真の極小(最適解)が得られる。
 - 感度解析も可能
 - 各座標ごとの誤差もわかる。
 - 誰がやっても同じ結果。高度熟練は不必要。
 - ユーザー研究室の大学院生を対象に毎年利用セミナー開催。

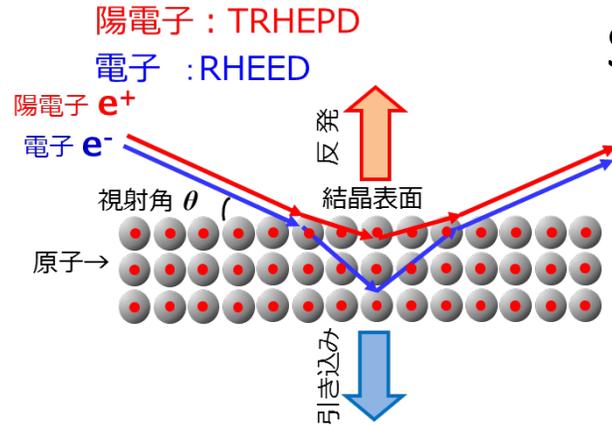
Y. Motoyama, et al., Comput. Phys. Commun. 280, 108465 (2022).

プレスリリース <https://www.kek.jp/wp-content/uploads/2022/07/pr20220729.pdf>

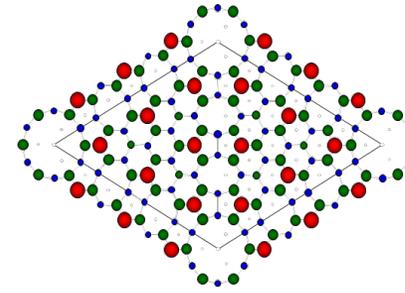
OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと, 陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの 低速陽電子生成部, ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- **TRHEPDによる表面原子配列解析の例** Fukaya et al., J. Phys. D: Appl. Phys. 52, 013002 (2019).
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

TRHEPD の表面超高感度性

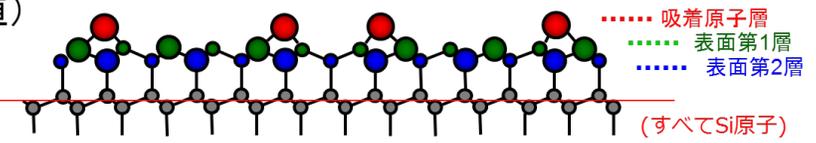


Si(111)-(7x7) 表面 を利用



計算に用いた構造
(ともに文献値)

↑ (7x7)構造
↓ バルク構造



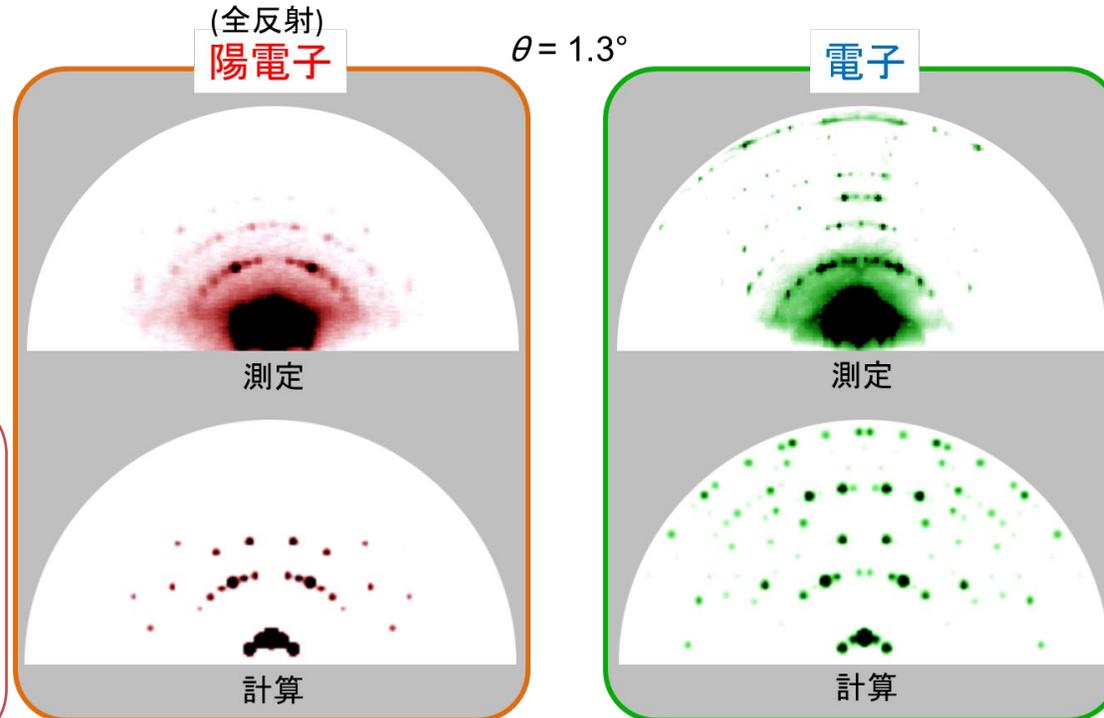
実験: 10keV $\theta = 1.3^\circ$ (陽電子全反射)

計算: **同じ解析プログラム**
(電荷符号だけ変える)
第3層までは既知の再構成配置
(文献)
それ以下はバルクのまま(文献)

陽電子と電子の比較

プローブする深さの違い

- (1) パターン(実験間/理論間)の差
- (2) 実験と計算の一致度の差
第4層以下の情報欠如は
陽電子の計算には影響しない



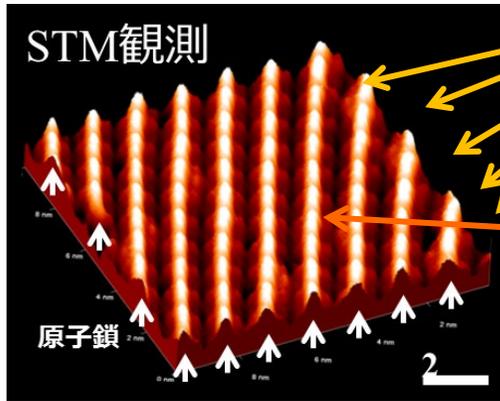
Y. Fukaya et al., Appl. Phys. Exp. 7, 056601 (2014)

プレスリリース <http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20140421141000/>

Ge(001)-(4×2)-Pt ナノワイヤ構造の確定

半導体表面上の貴金属原子ナノワイヤ

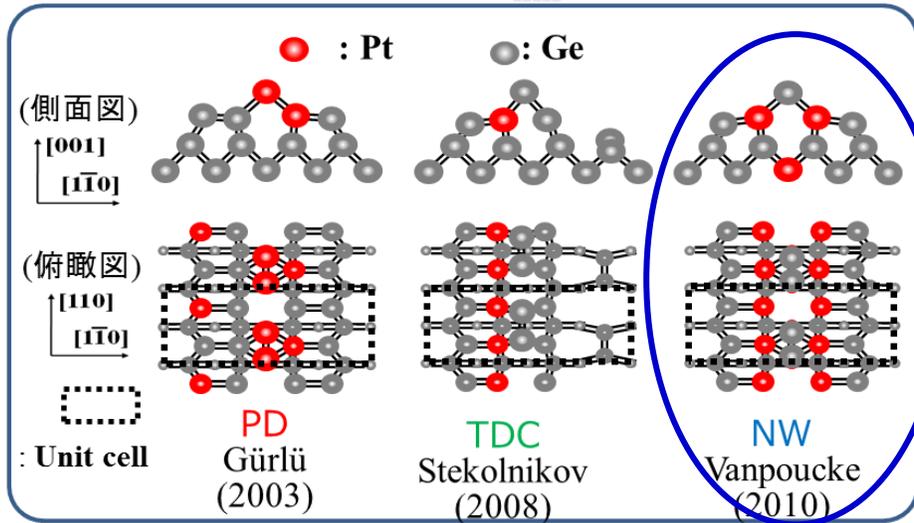
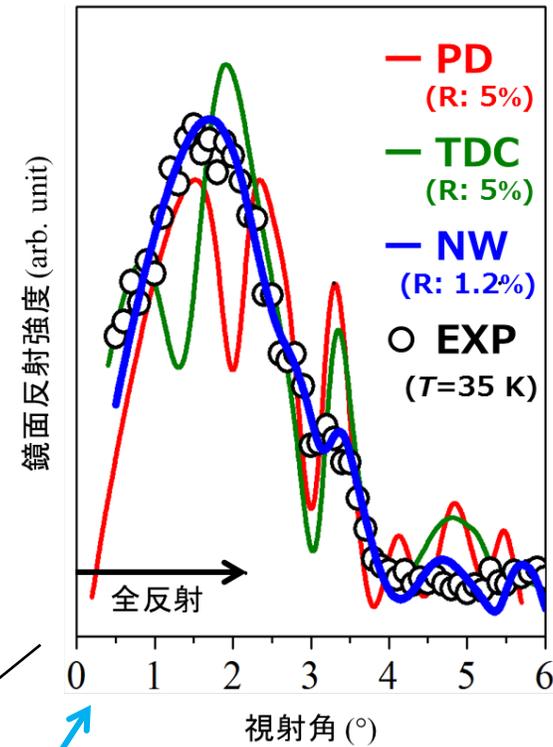
- 一次元原子鎖特有の新物性の探求の場。
- 構造(原子配列)の確定が必要。



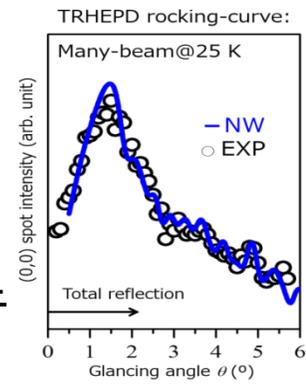
Ge(001)面に白金(Pt)を蒸着

これは Pt か Ge か?

干渉を利用するので、表面下の原子にも敏感



一波条件
この構造が正解
多波条件

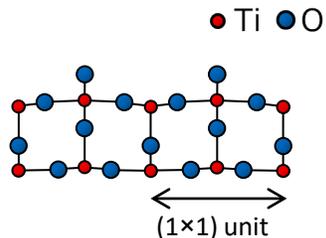
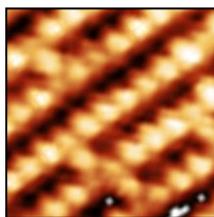


10年近くの論争を決着させた。

I. Mochizuki, et al., *Phys. Rev. B* 85, 245438 (2012)

ルチル型-TiO₂(110)-(1×2) 表面の構造決定

ルチル型TiO₂(110)(1×1) 表面

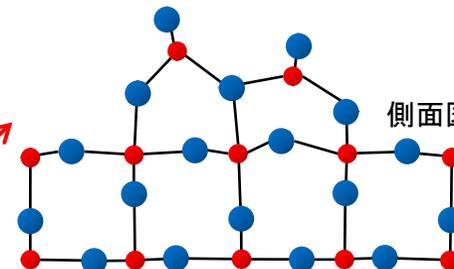
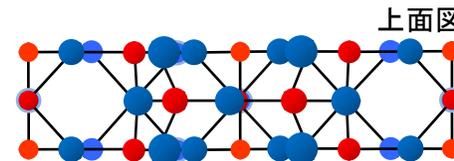


~1200K
で焼鈍すると

表面構造
確定済み (最も安定)

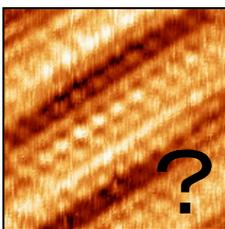
TiO₂ (酸化チタン)
光触媒, 気体センサー, 触媒担体
金属酸化物触媒の標準物質
単結晶 TiO₂ 表面
(原子レベルでの触媒プロセスの
解明に重要)

TRHEPDで決定した表面



多波条件解析

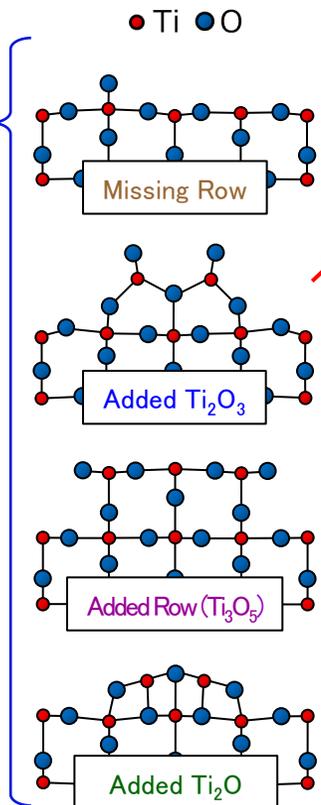
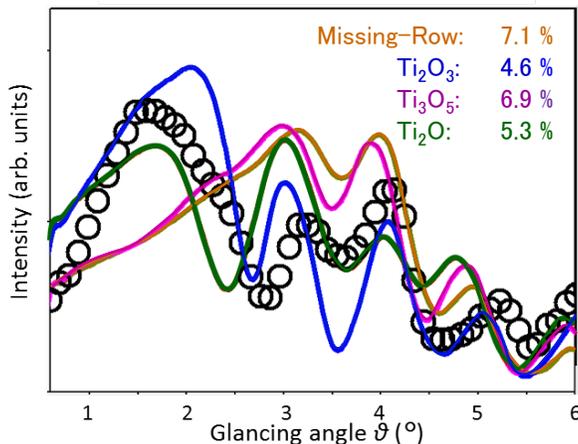
(1×2) 表面構造に変化



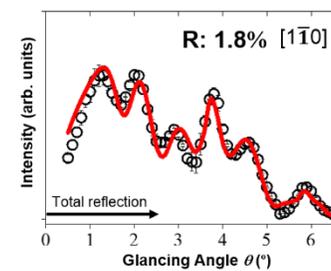
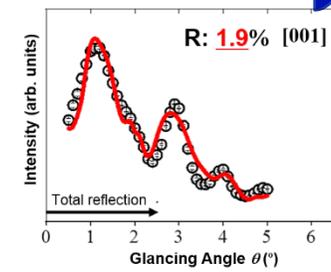
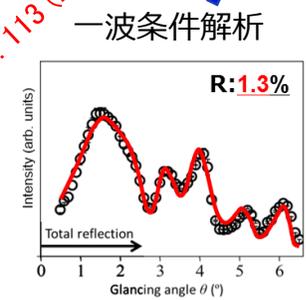
多くの構造モデルが
提案されていた

どの構造モデルも
TRHEPD データを
再現できなかった

One-beam analysis



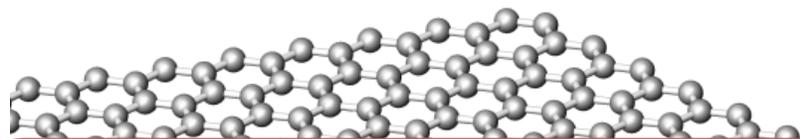
吸着層の非対称性容認
Wang et al. Phys. Rev. Lett. 113 (2014) 266101



非対称-Ti₂O₃ モデル
が正解
30年にわたる論争に決着

I. Mochizuki et al. PCCP 18 (2016) 7085-7092
プレスリリース
<http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20160224140000/>

第14族元素の原子層物質



グラフェン(C)

- 層状結晶フラファイト(石墨)の1原子層のみを取り出したナノ構造。
- 極めて高い電子移動度、熱伝導度、剛性。
- 省エネ・高速電子デバイス実現のための新素材として期待。
- 基板の上に合成されることが多い。

シリセン(Si)・ゲルマネン(Ge)

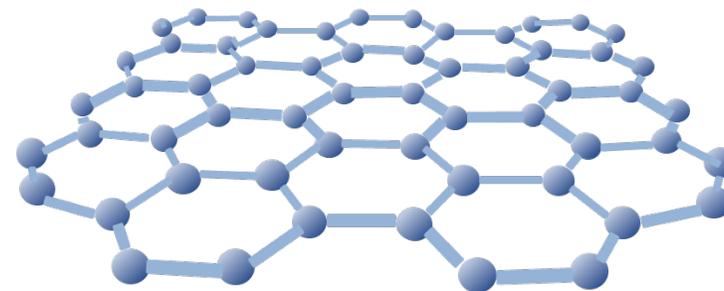
- SiやGeの同様の層状物質
- グラフェンと異なりバックリング(凸凹)をもつ
- バックリングの大小で電子状態が違う

TRHEPD で測定する必要性

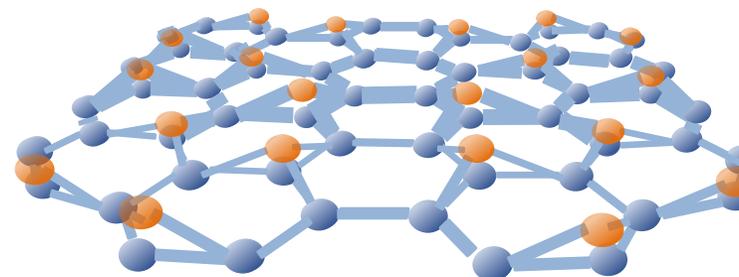
- 基板につくった原子層物質は基板の種類によって性質が異なる。基板上の違いによる多様性の研究も重要。
- バックリングの大きさ
- 基板との距離の大きさ
- TRHEPDを用いれば正確の測定が可能

周期 族	13	14	15
2	B	C	N
3	Al	Si	P
4	Ga	Ge	As
5	In	Sn	Sb
6	Tl	Pb	Bi

グラフェン(C): 平面状

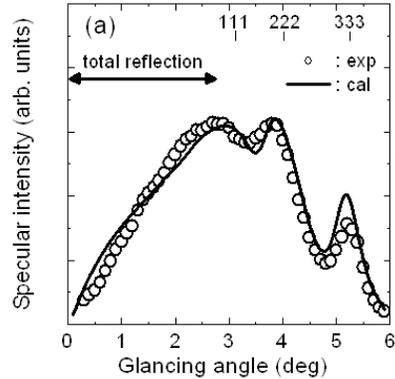


シリセン(Si) ゲルマネン(Ge): バックリング

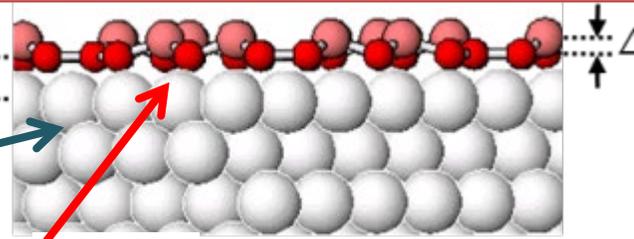


Ag(111) 表面上のシリセンの構造決定(2013)

シリセン(Si 原子の1層だけのシート)
次世代高速デバイス用の基板として期待されている
バックリングの大きさが電子状態が変化(Δ の測定重要)

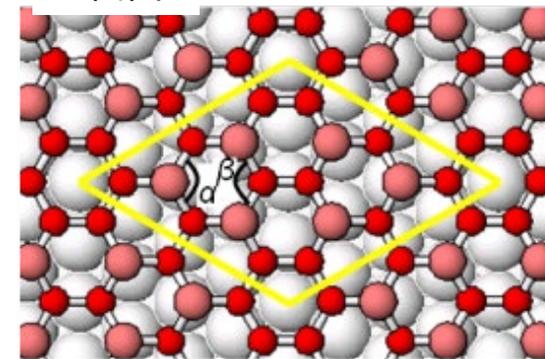


基板のみ

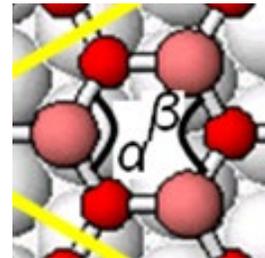


側面図

赤丸: どちらも Si 原子
灰色丸: Ag 原子

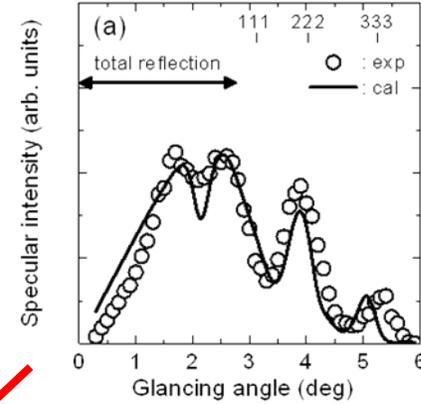


上面図



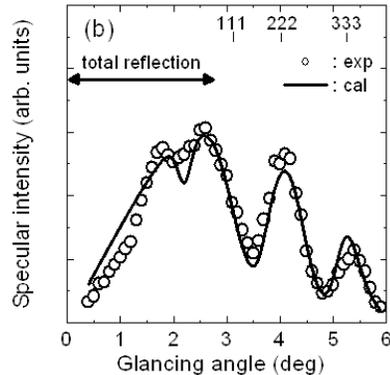
$\Delta = 0$ (平面) なら
 $\alpha = \beta = 120^\circ$
 $\Delta \neq 0$ なので
測定必要だった

シリセン蒸着後



多波条件の測定
(α と β の決定)

↓
Si蒸着で
がらりと変わる
→表面超敏感性



一波条件の測定
(d と Δ の決定)

	バックリング Δ (Å)	Si-Ag間 d (Å)	結合角 α (°)	結合角 β (°)
本実験	0.83	2.14	112	119
理論 (Vogt ら)	0.78	2.17	110	118

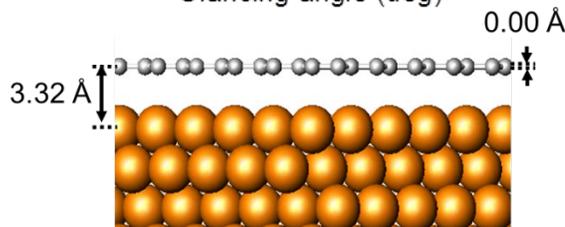
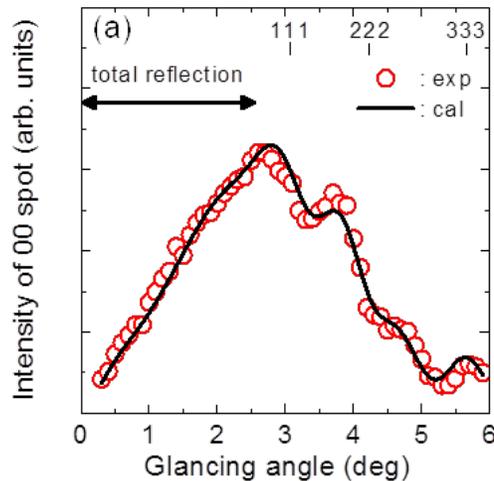
Fukaya et al., *Phys. Rev. B* 88, 205413 (2013)

プレスリリース <http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20131121140000/>

金属基板上のグラフェンの構造決定 (2016)

理論が予想するバックリングの大きさ、基板との距離についての、
高精度の直接測定

Graphene on Cu(111)



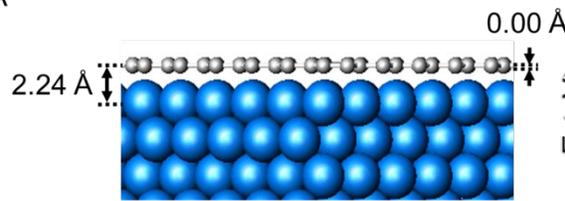
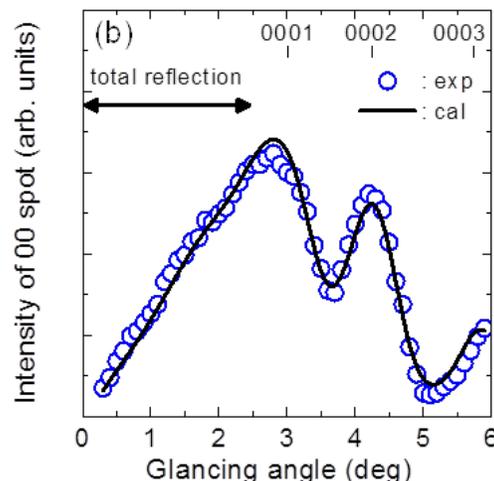
側面図

バックリングなし
基板との距離 大

Theory

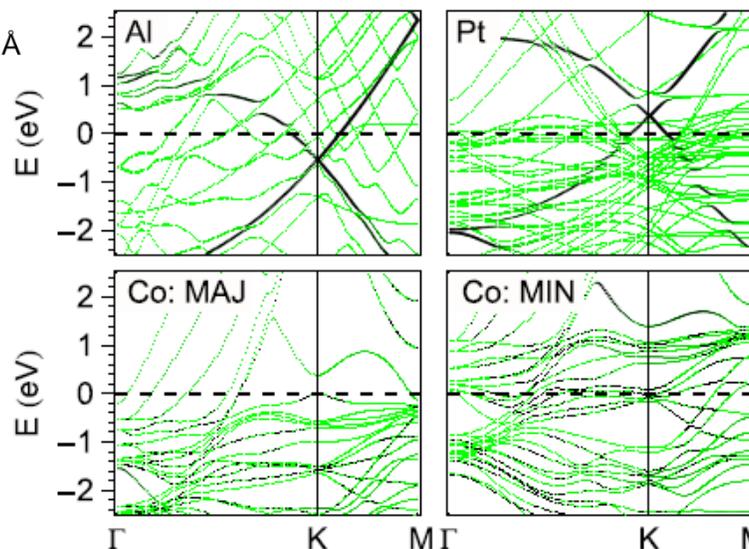
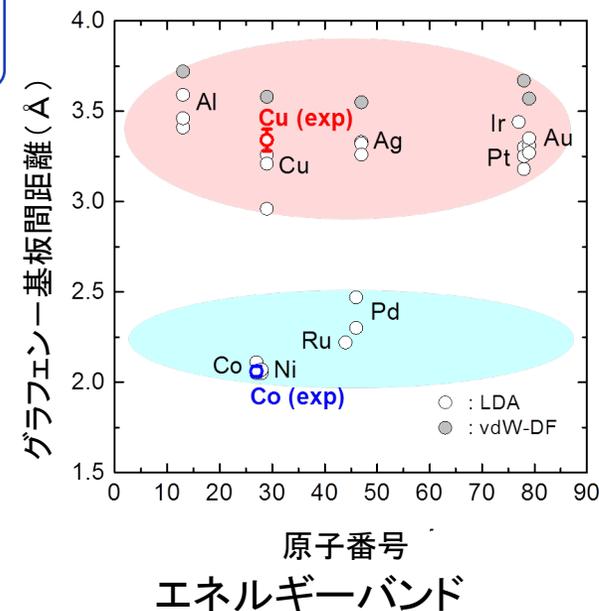
Giovannetti, Phys. Rev. Lett. (2008).
Vanin, Phys. Rev. B (2010).
Gong, J. Appl. Phys. (2010).

Graphene on Co(0001)



側面図

バックリングなし
基板との距離 小



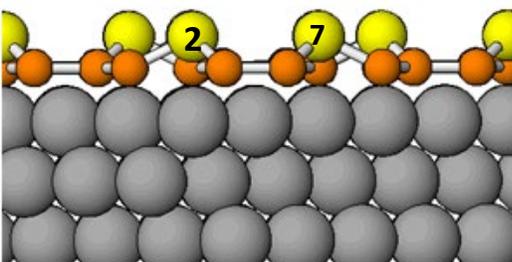
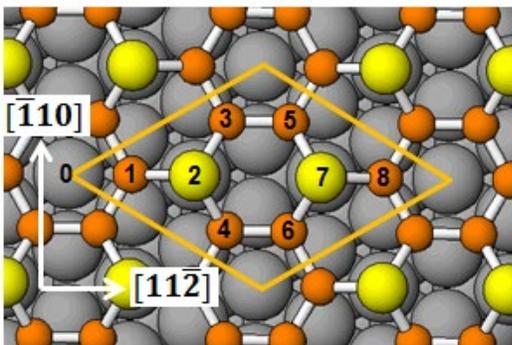
Y. Fukaya, et al., *Carbon* **103** (2016) 1.

AL(111) 面上のゲルマネン非対称性発見 (2016)

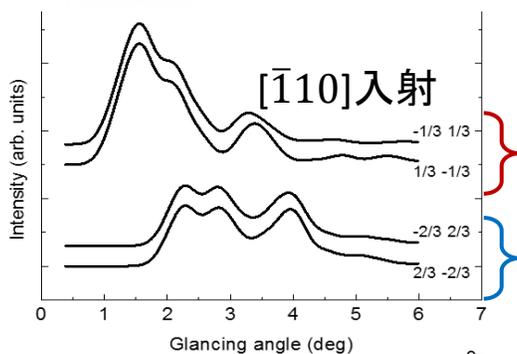
バックリングの詳細について、従来の予想を明確なデータで否定し、TRHEPDに基づく構造を決定

従来のモデル (対称的)

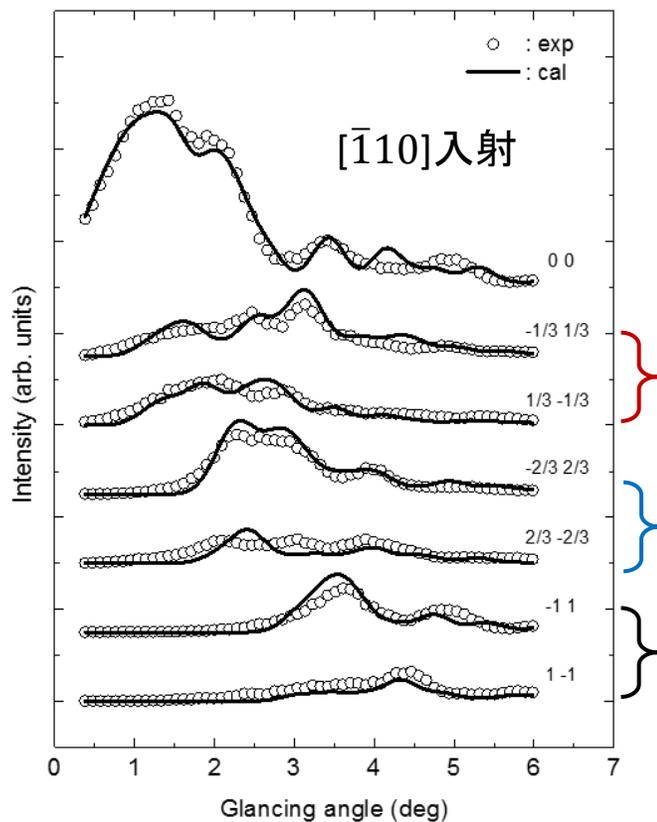
Top view



Side view



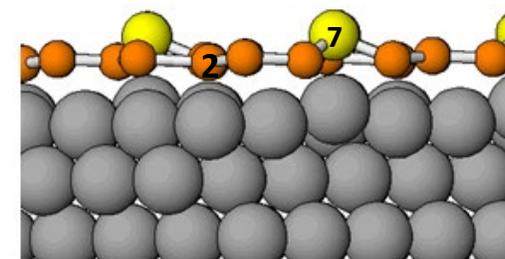
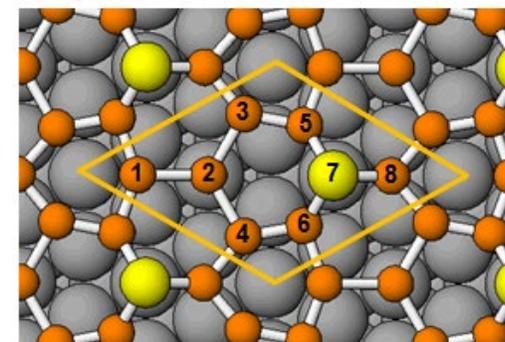
TRHEPD (測定・計算)



TRHEPDで決めた構造

(非対称)

Top view



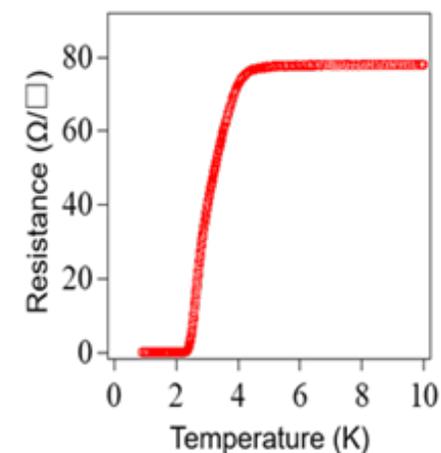
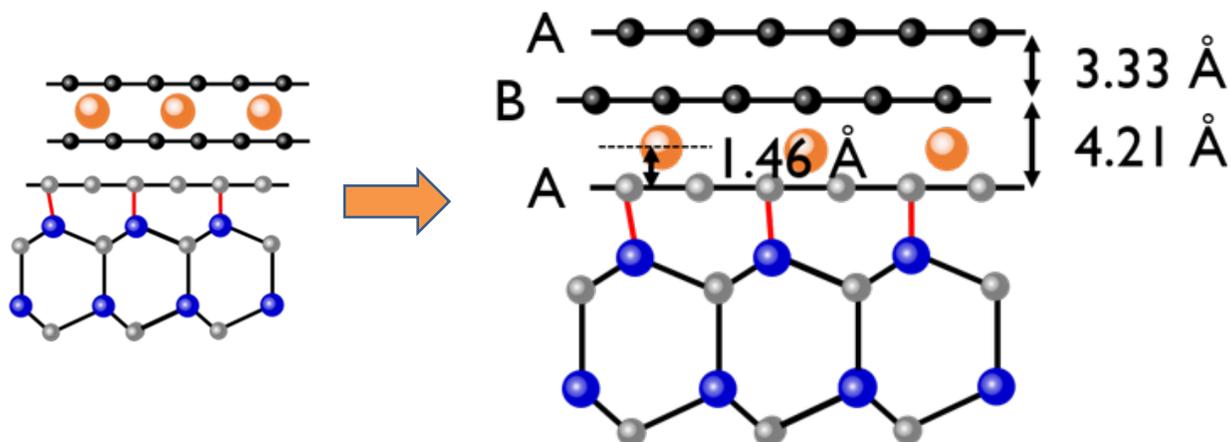
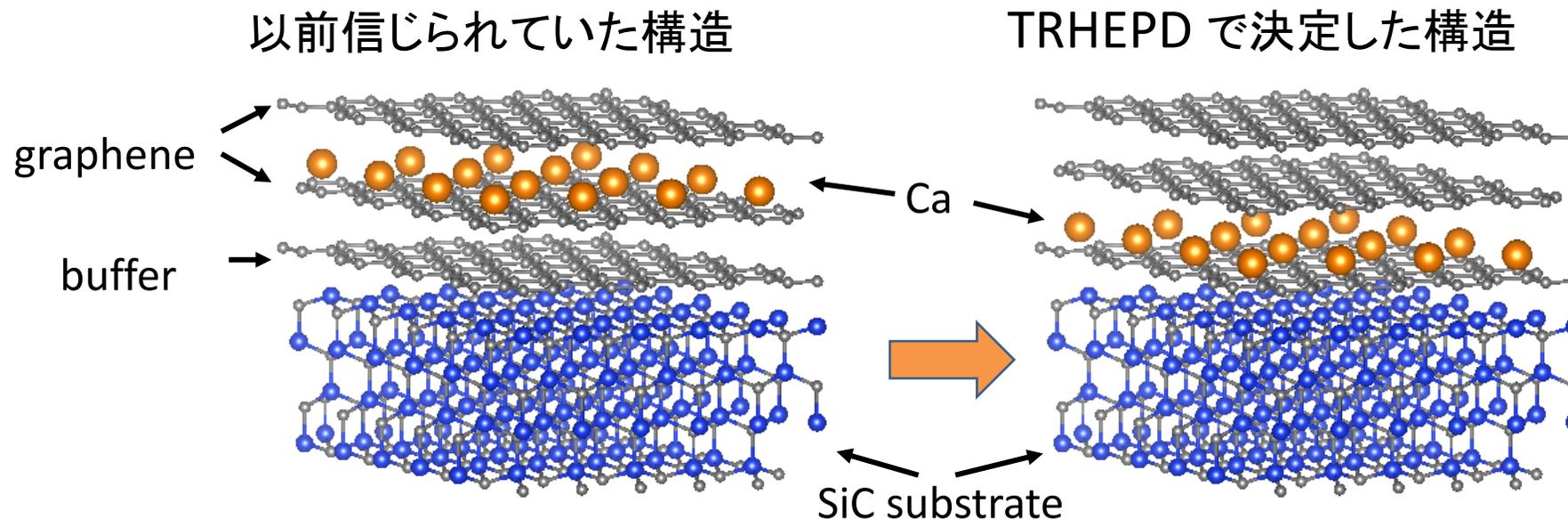
Side view

対称だった場合の計算: 実験(上図○)と全く合わない

Y. Fukaya, et al. *2D Materials* 3, 035019 (2016).

プレスリリース <http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/pressrelease20160913.pdf>

2層グラフェン超伝導体の構造決定(2020)



Y.Endo, et al., Carbon 157, 857–862 (2020)

プレスリリース <https://www.kek.jp/ja/newsroom/attic/PR20191114.pdf>

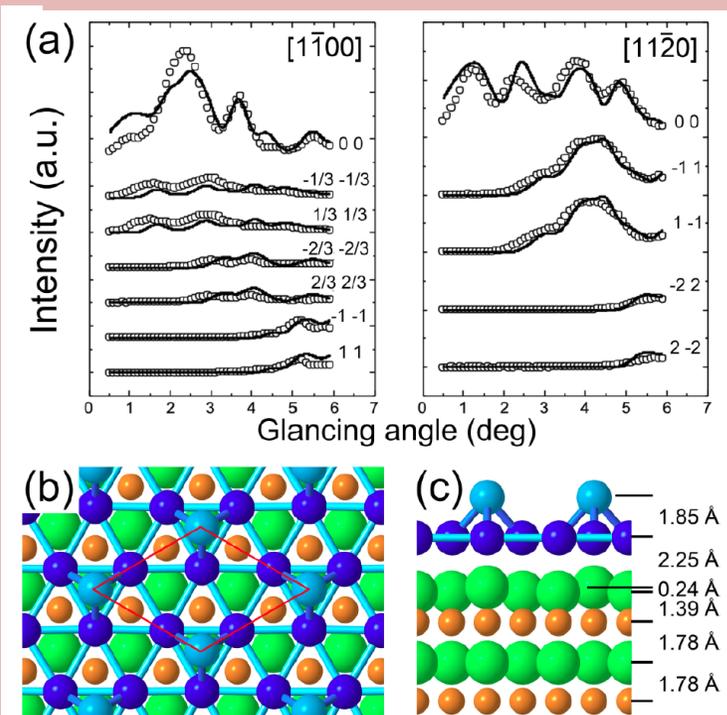
超伝導特性

Geの二重三角格子による二次元原子層 (2020)

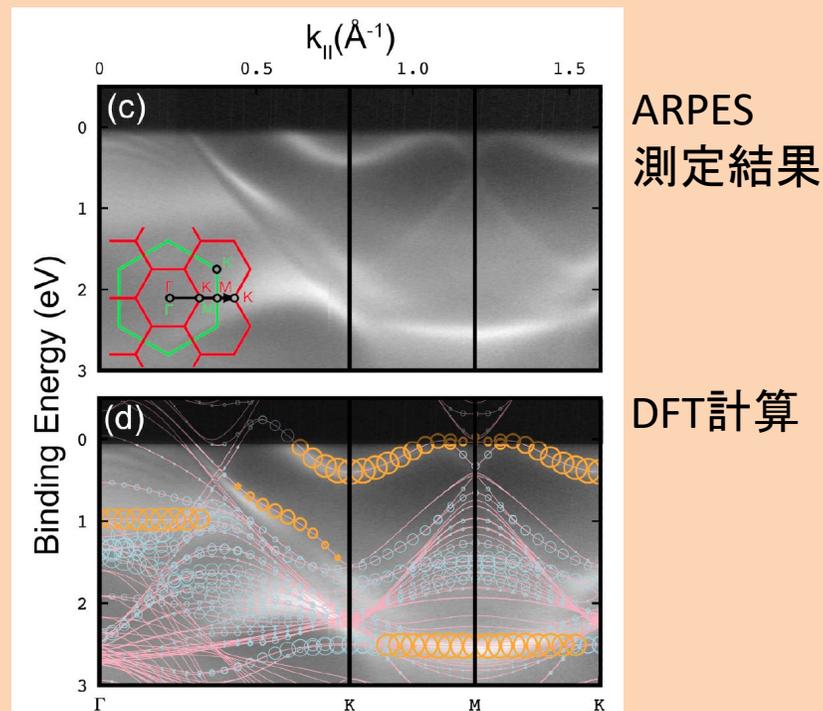
A. Fleurence, *et al.*, Phys. Rev. B 102, 201102(R) (2020).

- Ge(111)基板の上にZrB₂薄膜をエピタキシャル成長させた。
- STM観測と内殻光電子分光測定の結果, 二次元Ge層が形成されていることはわかっていた。
- 二次元Ge層は, 第一原理計算によって「二重三角格子」と考えられていたが, 全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) で実験的にそれが確認された。
- 二重三角格子はカゴメ格子と同じ起源をもつ「フラットバンド」を発現する可能性がある。

TRHEPD実験によって特定された 二重三角格子構造



角度分解光電子分光 (ARPES)の測定結果 と特定された構造を基にしたDFT計算



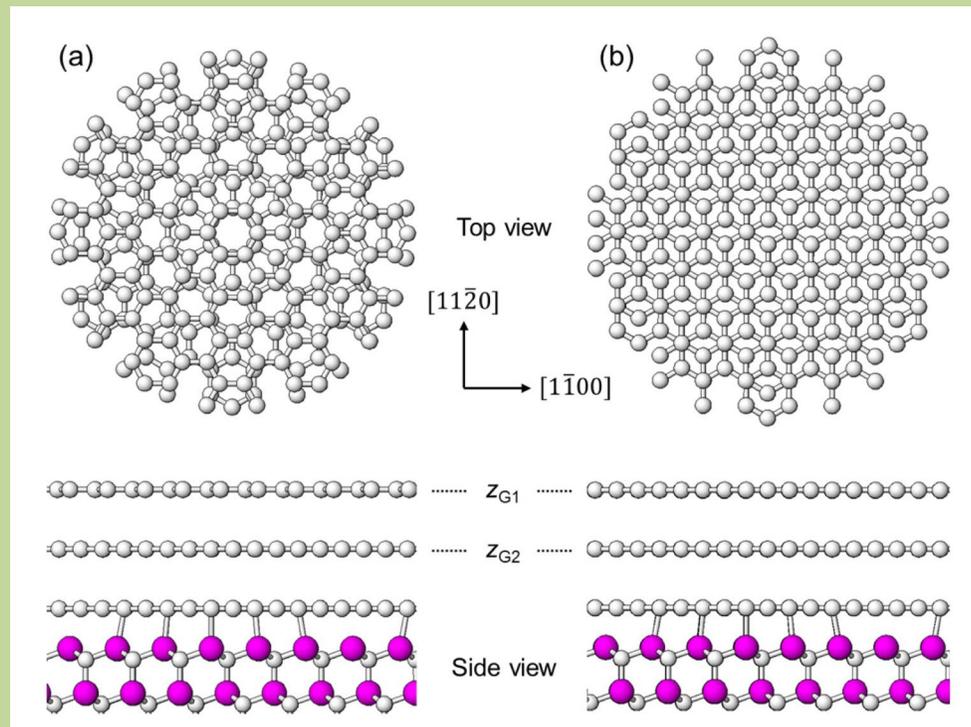
準結晶2層グラフェンの構造解析 (2021)

- SiC(0001)上の30°ねじれた2層グラフェンは、2次元準結晶構造を示す。
- 準結晶2層グラフェンの層間隔 d_{12} ($= z_{G1} - z_{G2}$)を、全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) によって決定した。($d_{12} = 3.46 \pm 0.06 \text{ \AA}$)
- グラフェン層間隔のねじれ角 θ 依存性の第1原理計算の結果 ($d_{12} = 3.42 \text{ \AA}$ at $\theta = 29.4^\circ$, K. Uchida, et al., Phys. Rev. B 90, 155451 (2014)) とほぼ一致した。

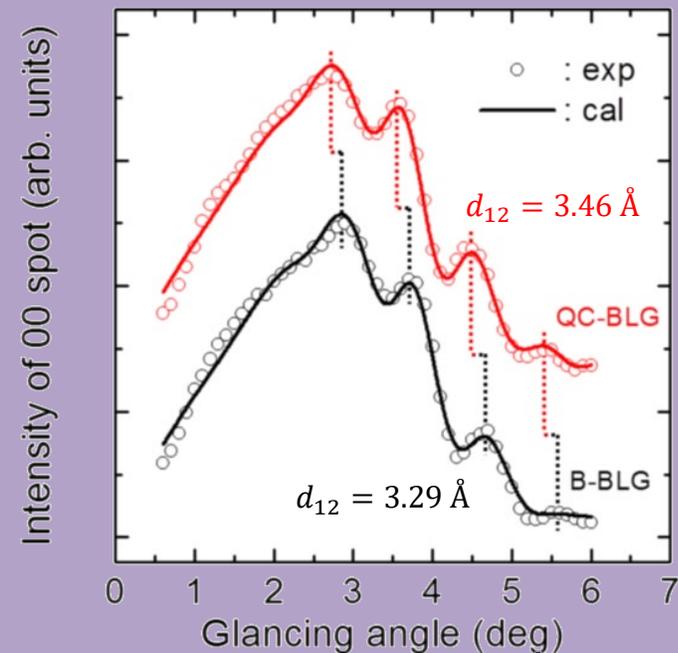
Y. Fukaya, et al., Phys. Rev. B 104, L180202 (2021).

準結晶2層グラフェンR-30° (QC-BLG)

Bernal(AB)積層2層グラフェンR-60° (B-BLG)



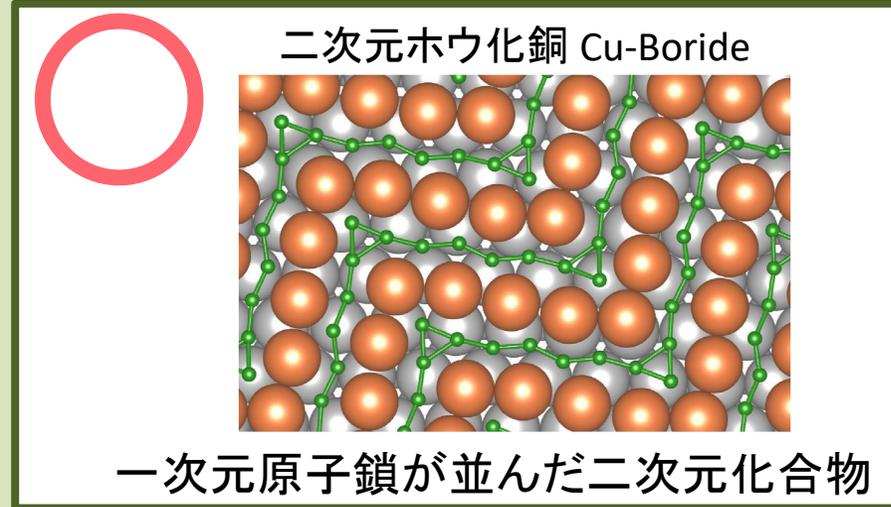
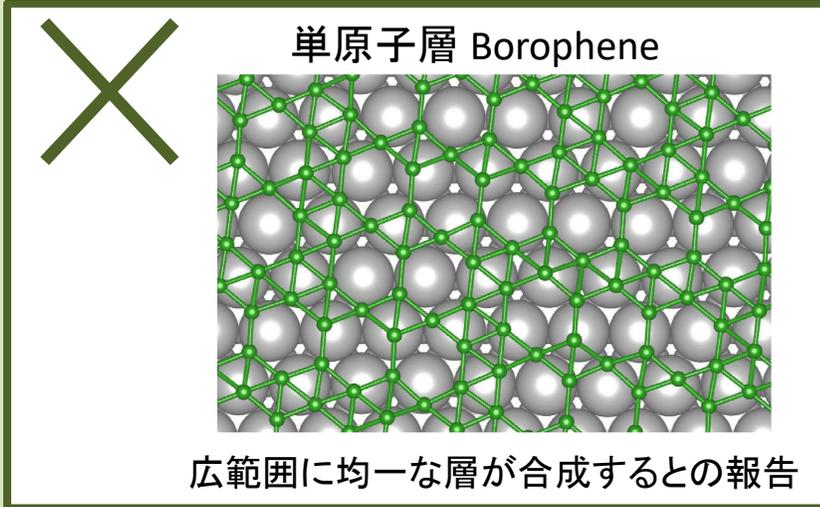
TRHEPDロッキング曲線(一波条件)
ピークのずれは層間隔の違いに対応
赤: QC-BLG, 黒: B-BLG



Cu(111) 基板上的のホウ素原子鎖 (2022)

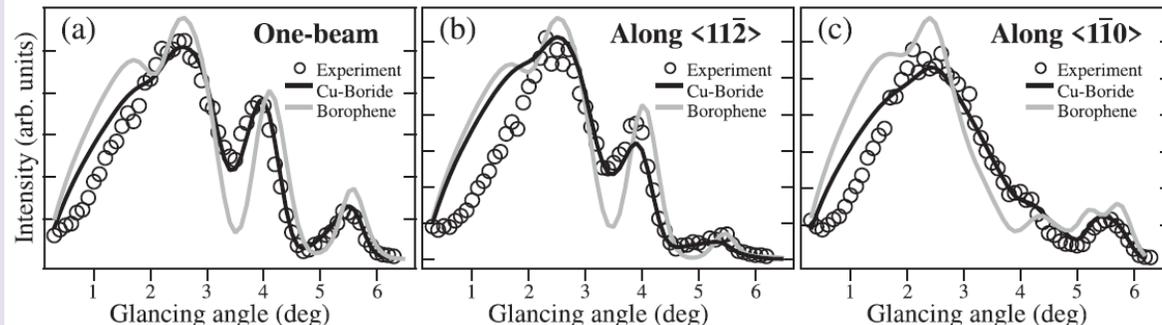
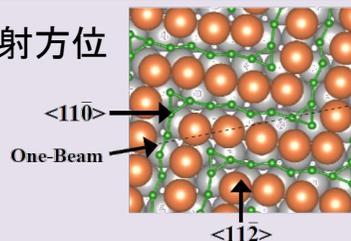
- ホウ素化合物は低次元においても多彩な構造をとり, 新規な物性や応用材料として期待されているが, 解析の難しさからその二次元構造の実験的決定は行なわれていなかった。
- Cu(111) 基板上に二次元ホウ素マテリアルを大面積で成長させた。
- 全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) と X線光電子分光 (XPS) 測定および第一原理計算により, このCu上の二次元ホウ素化合物は, Cu-Borideであることを確認した。

Y. Tsujikawa, *et al.*, Phys. Rev. B 106, 205406 (2022).



TRHEPD ロッキング曲線

ビーム入射方位



OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと, 陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの 低速陽電子生成部, ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

- 1927年に電子回折発見
 - Davisson and Germer, Phys. Rev. 30, 705 (1927) → LEED
 - Thomson, Proc. Roy. Soc. A117, 600 (1928) → TED
 - Nishikawa and Kikuchi, Nature 121, 1019 (1928) → RHEED
- 1971年にLEEDの動力学的理論
 - Tong and Rhodin, Phys. Rev. Lett. 26, 711 (1971)
- 1970年代末からBrandeis大(米国)のCanterがLEPD装置開発
- LEPD回折ピークの観測(1980)
 - Rosenberg, et al., Phys. Rev. Lett. 44, 1139 (1980)
- LEPDによる原子配列解析(1989)
 - Horsky, et al., Phys. Rev. Lett. 62, 1876 (1989)

- **LEPD**の大きな可能性確認
 - Tong, Surf. Sci. 457, L432–L436 (2000)
“Why is the positron an ideal particle for studying surface structure?”
- KEK物構研で加速器ベースの低速陽電子ビームによる**LEPD** 観測
 - K. Wada, et al., e-J. Surf. Sci. Nanotech. 16, 313 (2018)
- 2023年 KEK物構研の**LEPD**ステーション改造完成, 測定開始

LEED と LEPD の回折強度理論(ほぼ共通)の概要

入射エネルギー 20~300 eV (RHEEDより複雑)

→ 物質電子との相関相互作用, 交換相互作用が無視できない。

→ 局所密度近似(LDA)で self-consistent に取り入れる

原子の電荷分布とポテンシャル

$$\begin{aligned} U_a(r) &= \frac{-Ze^2}{|\mathbf{r}|} + e^2 \int d^3 r' \frac{\rho(r')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} - 3\alpha e^2 [(3/8\pi)\rho(r)]^{1/3} \\ &= U_a^0 - 3\alpha e^2 [(3/8\pi)\rho(r)]^{1/3} \end{aligned}$$

これから結晶の電荷分布とポテンシャル構成(マフィン-ティン近似)

$$V_c^0(\mathbf{r}) = \sum_{n=0}^{n_{\max}} \{V_a^0(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) - 3\alpha e^2 [(3/8\pi)\rho(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n)]^{1/3}\}$$

α : local-density exchange-correlation coefficient,

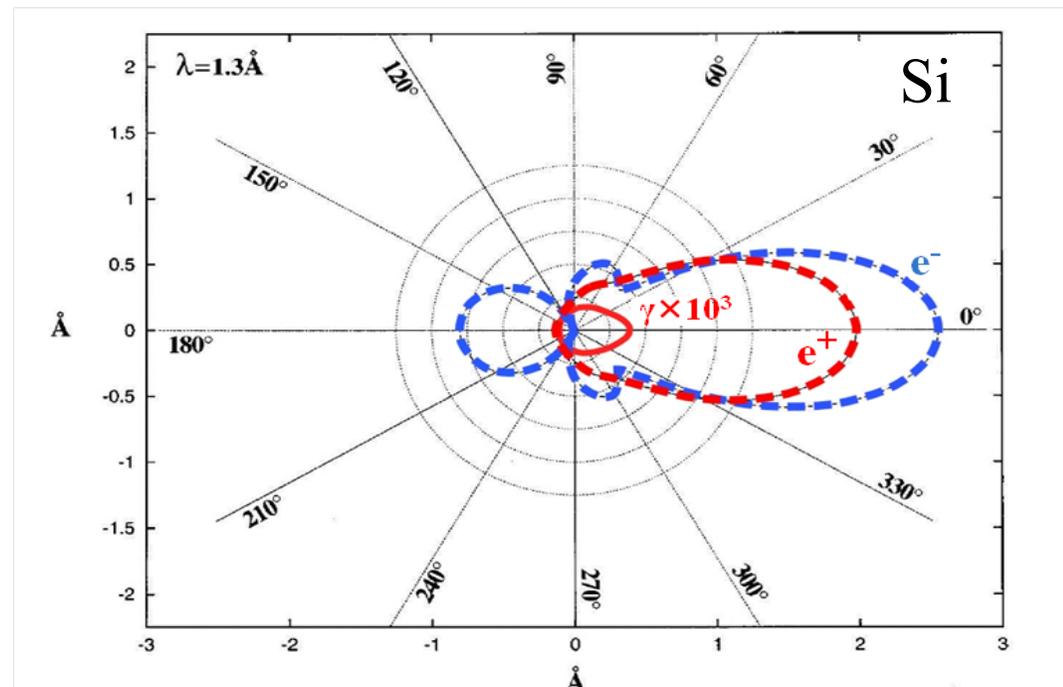
Kohn-Shamの値は 2/3 だが, 解析ではフィッティングパラメタ

電子と陽電子とX線の散乱因子

Si に対する, 微分散乱因子の
角度依存性 $|f(\theta)|$: 波長 $\lambda=0.13$ nm
光子 (9.6keV), 陽電子 (95eV),
電子 (95eV)

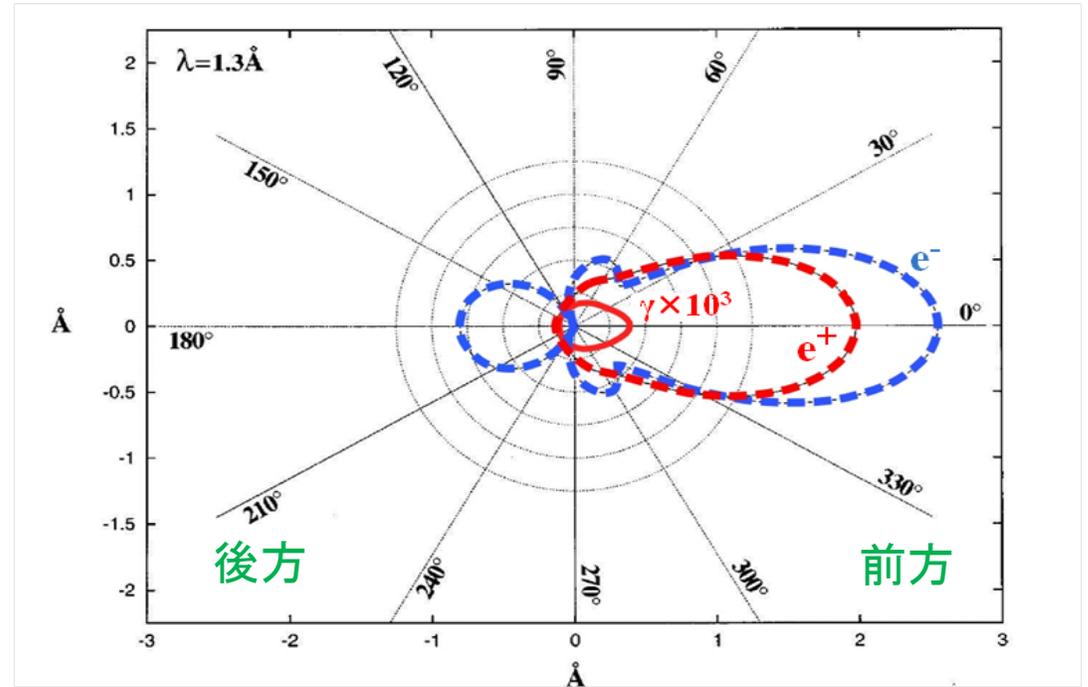
→ 陽電子の散乱因子は単純で
X線に近い。
かつ, X線より数千倍大きい。

Tong et al.: Phys. Rev. B 58 (1998)
10815.



LEPD (TRHEPDと比較)

- **LEPD**は垂直入射: 小さな試料でよい。(TRHEPDでは5mm程度の平坦性のよい試料が必要)
- 表面選択性は非弾性散乱の断面積できまる (TRHEPDと同じ)。
- **TRHEPD**は奇数回前方散乱をしたビームが寄与。
- **LEPD**は奇数回後方散乱をしたビームが寄与。
- 後方散乱断面積は, 前方散乱断面積より桁違いに小さい。
- (100eV 程度でも 約 1/20)
- **LEPD**の強度は, **TRHEPD**に比べて遥かに弱い。



Tong et al.: Phys. Rev. B 58 (1998) 10815.

LEPD (LEEDと比較)

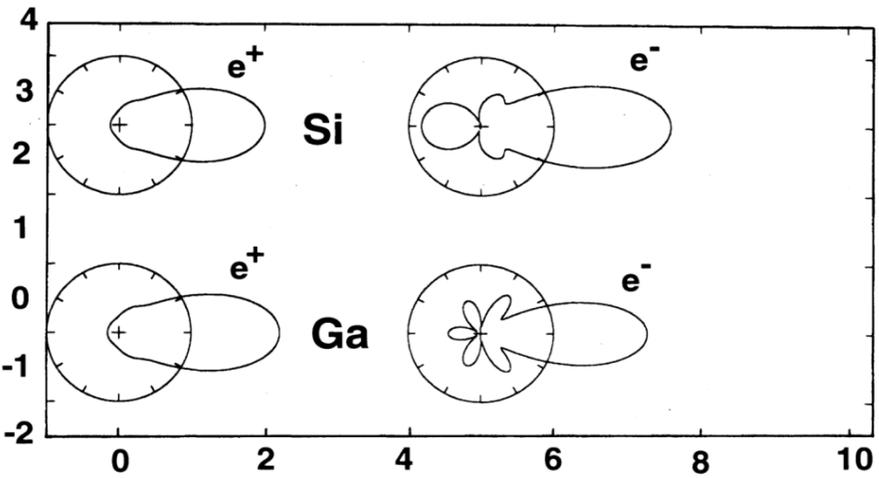
- LEEDは電子銃からのビームを使うので、強度は十分。
- 入射電子は物質電子と同種のフェルミ粒子: 交換相互作用あり。
(RHEEDは $E_{in} = 10\text{keV}$ なので、交換相互作用は無視できる。)
- 原子核に惹きつけられるので、内角電子とも相互作用する。
- 重い原子では相対論的効果も存在。

- LEPDで使う陽電子は、物質電子の交換相互作用がない。
- 原子核に反発されるので内殻電子とほとんど相互作用しない。
- 重い原子でも相対論的効果は無視できる。
- 解析に使う動力的散乱理論の近似が良好。
→ より正確な原子配列決定が可能。
- LEPDは強度の確保が課題。
(物構研 SPFでは最近解決)

電子の微分散乱因子 $|f(\theta)|$

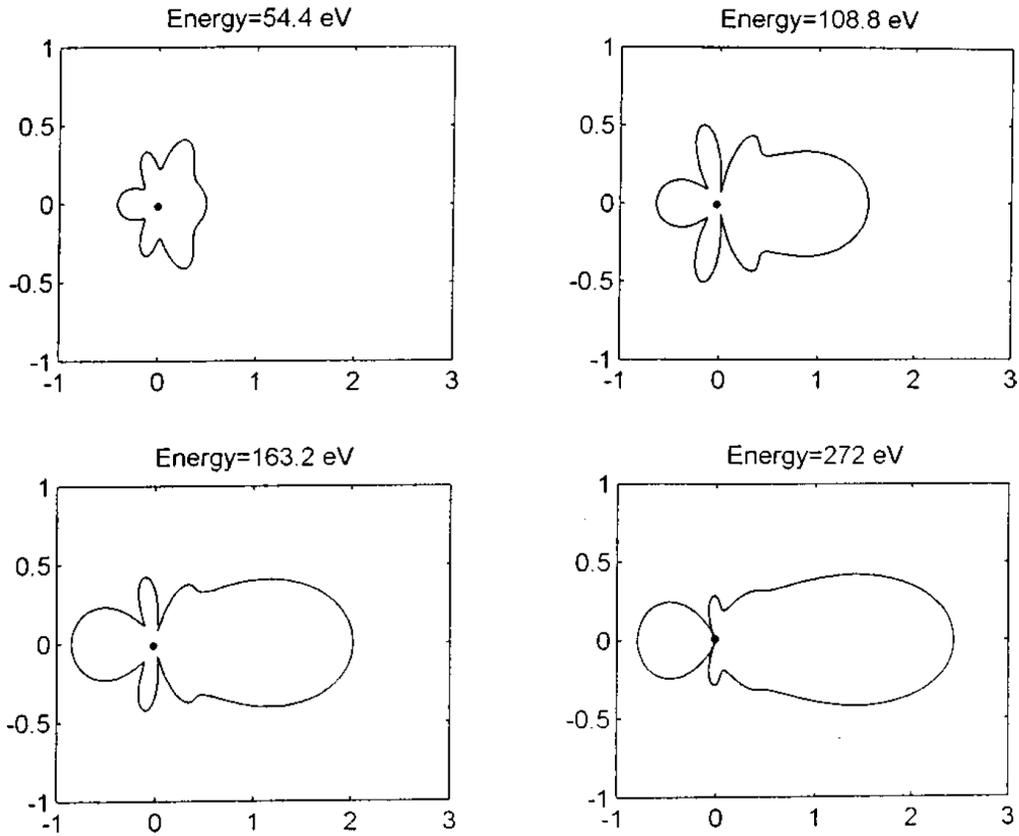
⇔ 回折法では、回折スポットの角度依存性やエネルギー依存性から原子配列を得る。

1個の原子の $|f(\theta)|$ が散乱角にもエネルギーにも依存することが頭痛の種



Si と Ga に対する、陽電子と電子の微分散乱因子の角度依存性 $|f(\theta)|$ (100 eV)

Tong: Surf. Sci. 457 (2000) L432.



Si に対する、電子の微分散乱因子 $|f(\theta)|$ のエネルギー依存性. (100 eV)

Tong, et al., Phys Rev. B 58, 10815 (1998)

OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと, 陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

物構研 SPF での LEPD ステーション開発

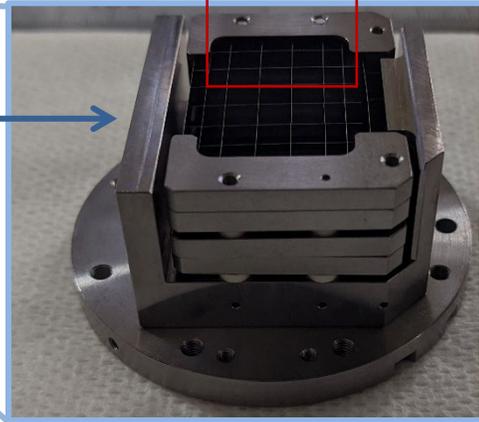
- 低速陽電子ビームの強度増強に務める。
 - 10年間で100倍近く増強した。
 - 低速陽電子生成部改良で10倍。イームライン最適化で10倍。
- 陽電子検出に1個1個数える遅延線位置敏感検出器を用いる。
- 遅延線位置敏感検出器はマルチヒットが誤差を生じるので、パルスビームは不向き。
 - ビームライン途中にパルス伸長部を置いて、パルス幅伸長。

低速陽電子生成ターゲットの改良(第2次)

低速陽電子生成ターゲット



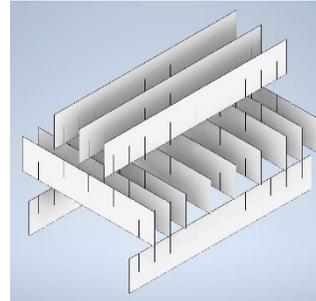
高速電子



低速陽電子

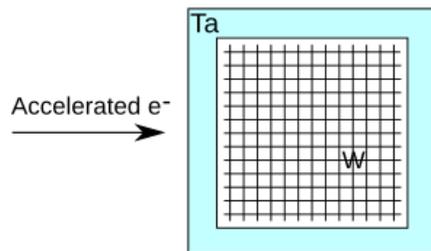
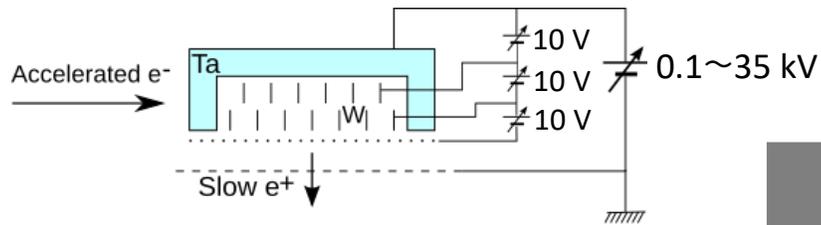
モデレータの組み上げ

厚さ25 μ mの短冊状のタングステン薄膜にレーザーで切り込みを入れて組み合わせる

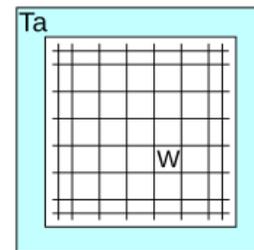
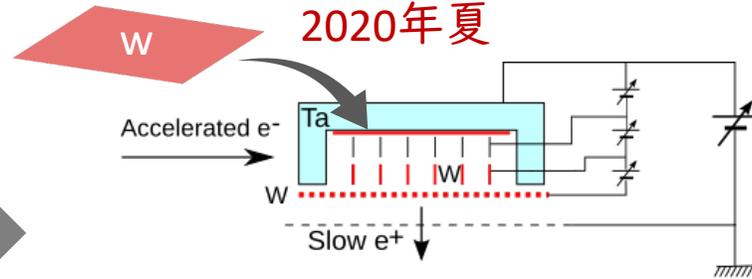


組み上げ後に2500 $^{\circ}$ C程度でアニール

2010年夏



2020年夏



- 2段の井桁リモデレータを互い違いにならない配置に変更
- コンバータと1段目の井桁リモデレータの間に1枚のW薄膜を追加
- 引き出しグリッドをW製に交換

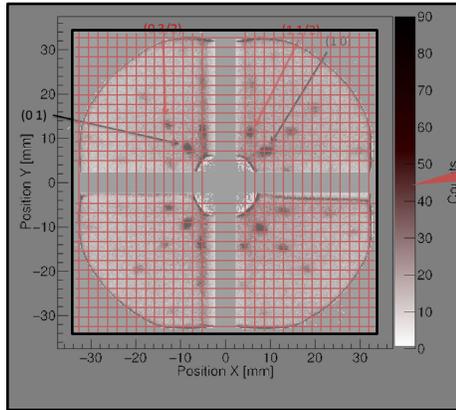
※ リニアック運転条件: 55 MeV, 550 W

10⁷ e⁺/s台だったビーム強度が1 × 10⁸ e⁺/sになった。

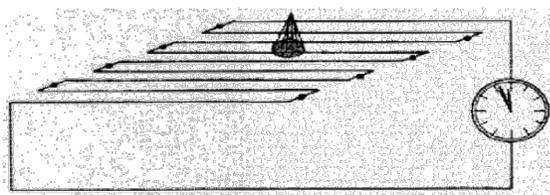
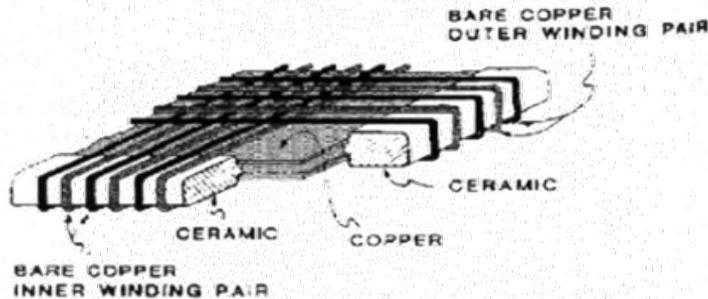


遅延線位置敏感検出器のアップデート

with a central hole



Delay-line detector (DLD)
(位置敏感検出器)

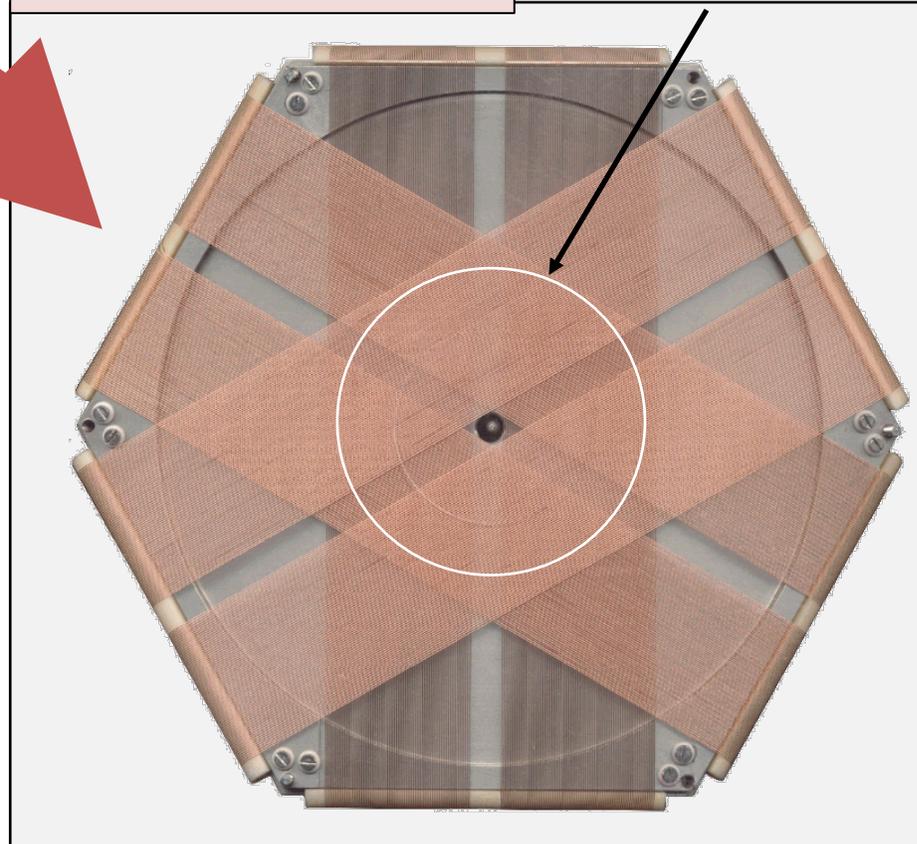


<http://www.roentdek.com/>

Delay-line detector
with hexanode (HEX)

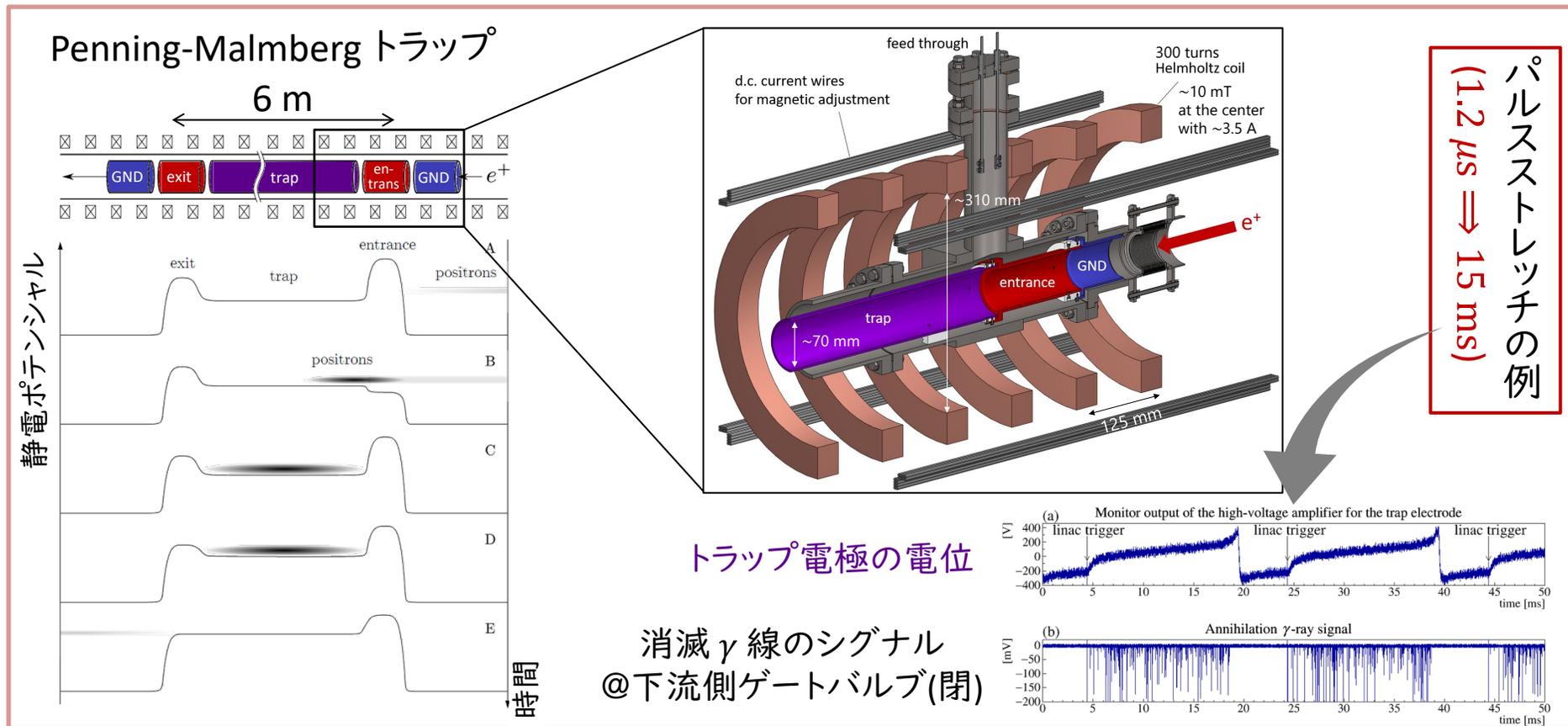
十字状の不感領域無し

MCPの直径

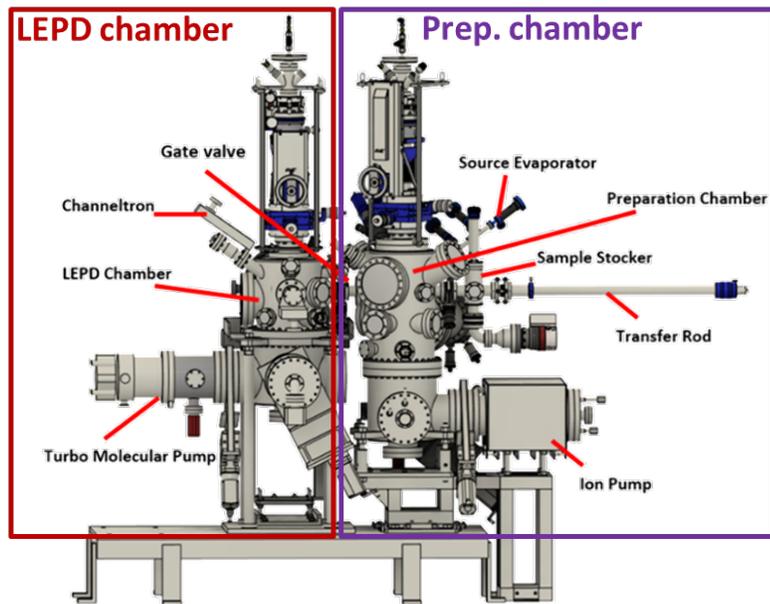


パルスストレッチャーの開発(2020)

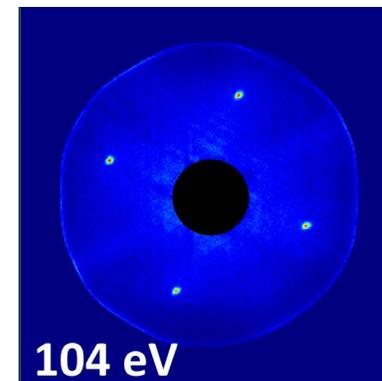
- 遅延アノード線検出器(DLD)は多重検出を許さない。
- 当施設の陽電子ビームは加速器により20 ms毎に約 $1 \mu\text{s}$ のパルス幅で供給されているが、このパルス幅を上限20 msまで伸長するパルスストレッチャーを開発した。
- 陽電子ビーム1パルス毎に、長さ約6 mの Penning-Malmberg トラップにトラップし、徐々に下流側に供給する。



物構研 SPFでのLEPD 測定開始



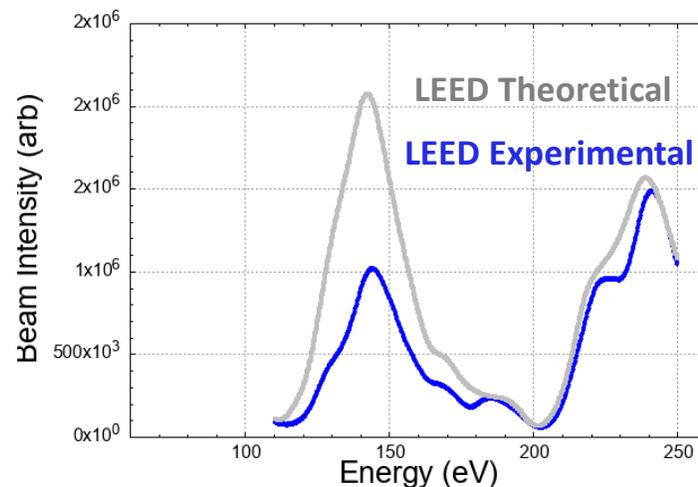
LEPDパターン1枚 1分
1試料の全測定 2時間



新LEPDチェンバーには
試料準備チェンバーが隣接

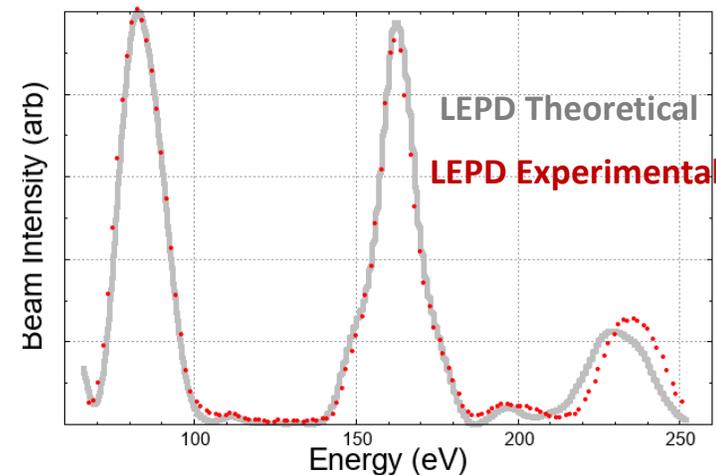
試料ロードロック室で真空分離
トランスファーロッドで試料移送

Energy vs Intensity-Cu(001)-1,0



LEED (比較)

Energy vs Intensity-Cu(001)-1,0

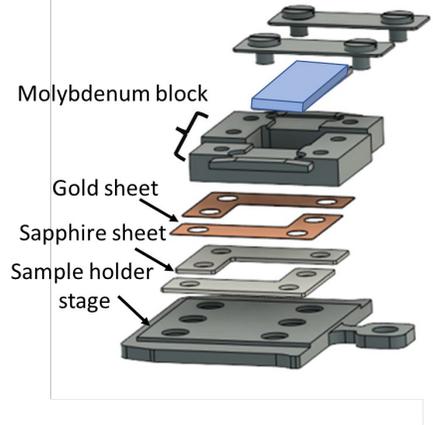


LEPD



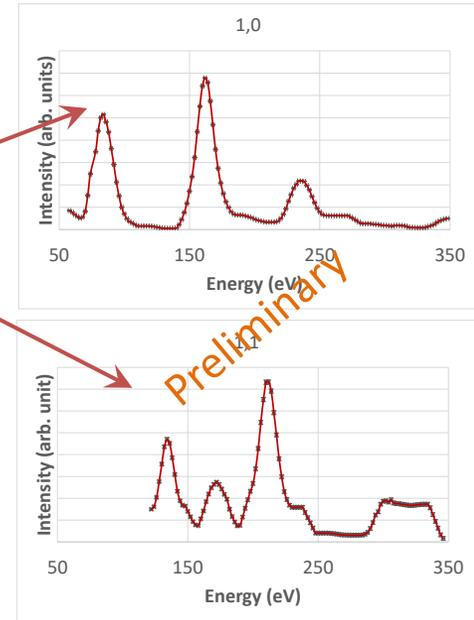
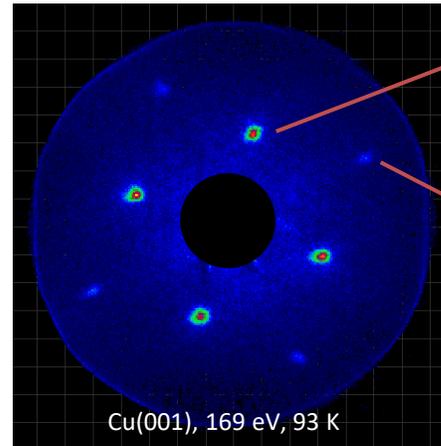
試料ホルダの共通化で同一試料で原子配列と電子状態測定

オミクロン型 試料ホルダ(新設計)



低速陽電子実験施設

**SPF-A4
(LEPD)**

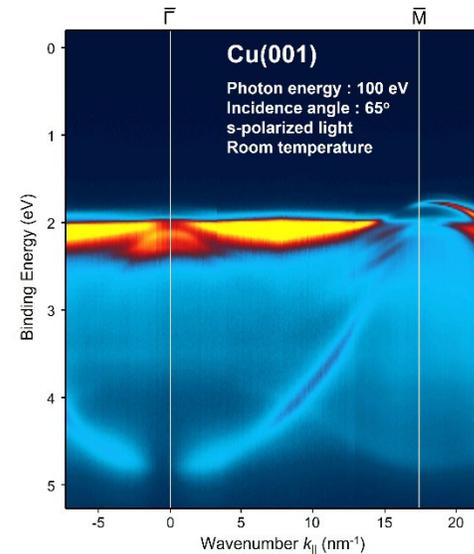


超高真空搬送ベッセル
を用いて清浄表面試料を搬送



フォトンファクトリー

**BL-13B
(ARPES)**

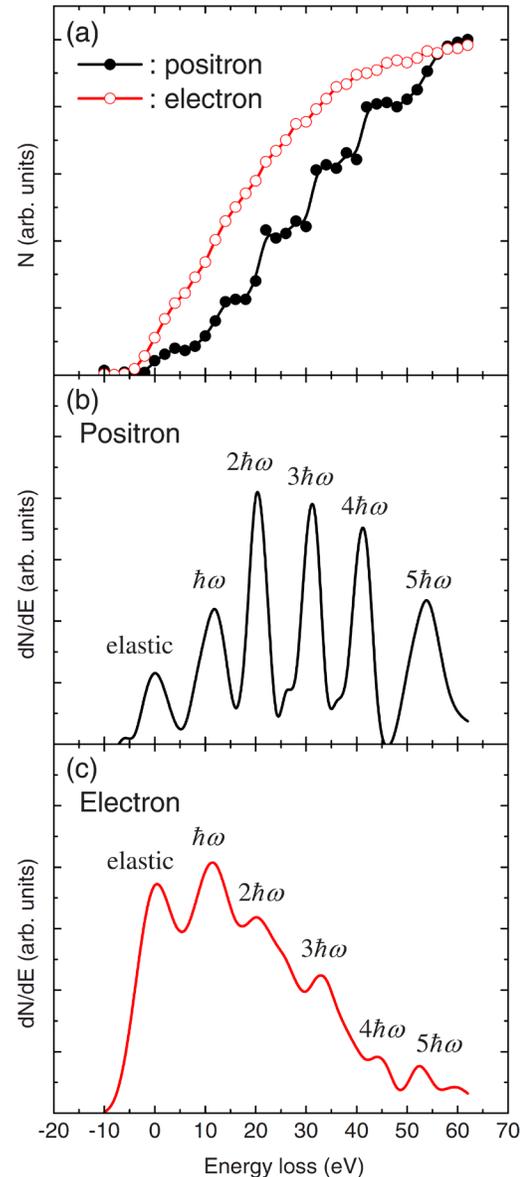


OUTLINE

- KEK 物質構造科学研究所(IMSS) 低速陽電子実験施設(SPF) について
- 「低速陽電子」についての予備知識
 - 陽電子を得る方法 → 「低速陽電子」を得る方法
 - 物質の内部静電ポテンシャルと、陽電子仕事関数・陽電子ビームの全反射
- KEK物構研SPFの ビームライン, 測定ステーション
- ステーションSPF-B1(汎用ステーション), SPF-B2(Ps-TOF)における実験
- 回折法による表面構造解析(表面原子配列解析)の予備知識
- 表面構造解析の必要性とその方法
- 電子回折(RHEEDとLEED)と陽電子回折(TRHEPDとLEPD)
- RHEEDとTRHEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(全反射と屈折の向き, 非弾性散乱)
- ステーションSPF-A3の, TRHEPDによる原子配列決定の流れ
- 表面データ解析プラットフォーム 2DMAT の導入
- TRHEPDによる表面原子配列解析の例
- LEEDとLEPDの歴史, 理論の概要, 表面感度(非弾性散乱), 原子散乱因子の違い
- 物構研 SPF の ステーションSPF-A4 (LEPDステーション)開発と2023年度のホットな成果
- 表面プラズモンの検出

表面プラズモンによるエネルギー損失

Si(111) 7x7



電子と陽電子のエネルギー損失スペクトル
一波条件の00スポット付近のエネルギーを分析

$$P(n) = \frac{n_s^n}{n!} \exp(-n_s)$$

表面プラズモンの平均励起数
 $n_s = 2.6$ (陽電子), 1.4 (電子)

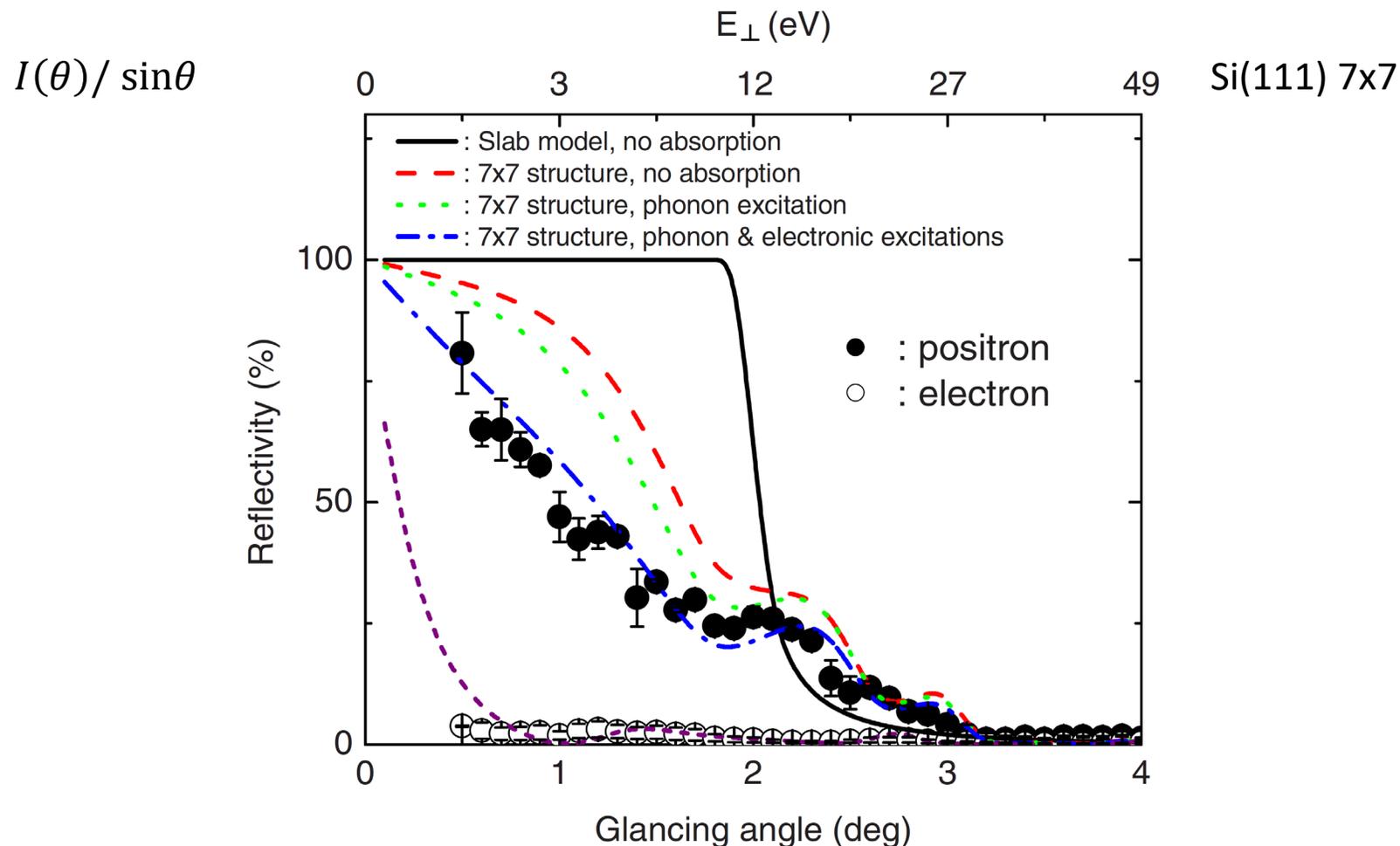
陽電子は全反射領域で測定
表面プラズモンのみを観測
高感度

Fukaya, et al., Phys. Rev. B 79, 193310 (2009)



鏡面反射の強度

最表面における非弾性散乱のため、全反射領域でも理想的な全反射より強度が小さい。



Fukaya , et al., Phys. Rev. B 79 , 193310 (2009)



ご清聴ありがとうございました。