

KEK 低速陽電子実験施設  
共同利用ステーションの最近の成果と開発状況

高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 物質構造科学研究所 和田 健

## 1 緒言

高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 物質構造科学研究所の低速陽電子実験施設では、大強度のエネルギー可変単色陽電子ビーム (低速陽電子ビーム) を共同利用に供している<sup>1-3)</sup>。近年、全反射高速陽電子回折 (total-reflection high-energy positron diffraction, TRHEPD) 実験ステーションの整備が進み<sup>4)</sup>、従来他の手法では詳細が不明であったいくつかの表面および表面近傍の原子配置が TRHEPD によって初めて明らかになるなど、共同利用の魅力的な成果が上がっている<sup>5-9)</sup>。その他、ポジトロニウム負イオンの光脱離<sup>10)</sup> およびそれを利用したエネルギー可変ポジトロニウムビーム生成の成功<sup>11)</sup> や、従来の装置を改良して時間分解能が向上したポジトロニウム飛行時間 (Ps-TOF) 測定<sup>12,13)</sup> など、ユニークな実験が行なわれている。

当施設における近年の共同利用の成果については、最近、「陽電子科学」において報告した<sup>14)</sup>。本稿では、その内容と一部重複するが、共同利用に公開されている Ps-TOF と TRHEPD 実験ステーションにおける成果を中心に、簡単に施設利用の成果と開発状況について紹介する。さらに詳しい内容については、上記文献<sup>14)</sup> や本稿の引用文献を参照されたい。

## 2 KEK 低速陽電子実験施設の最近の共同利用の成果

KEK の低速陽電子実験施設では、専用リニアック (55 MeV, 600 W 運転) により、パルス幅 1 ns–10 ns で

可変のショートパルスモード ( $\sim 10^6$  slow- $e^+$ /s) と、パルス幅  $\sim 1$   $\mu$ s のロングパルスモード ( $\sim 10^7$  slow- $e^+$ /sec) の低速陽電子ビームを共同利用実験に供している。いずれのモードも繰り返しは最大 50 Hz である。

時間分解能が問題となる Ps-TOF 実験や、パルスレーザーとのマッチングが必要となるポジトロニウム負イオン実験には、ショートパルスモードのビームが用いられている。このうち、Ps-TOF 実験装置が共同利用に公開されているので、以下で Ps-TOF 実験の最近の成果を紹介する。

低速陽電子ビームを物質に入射すると、熱化した後に一部が表面で 1 個の電子と結合して Ps になり、真空中に放出される。合成スピンの 1 のオルト-ポジトロニウム (*o*-Ps) の真空中の寿命は 142 ns である。約 10 ns 幅のパルス陽電子ビームを用いて Ps を生成し、試料位置から数 cm の位置に設置した鉛スリットの前を通る時に消滅した *o*-Ps からの消滅  $\gamma$  線を検出すると、その時間分布から Ps 放出エネルギーの分布を知ることができる。最近、東京理科大学の長嶋グループの尽力により、時間分解能が以前の 23 ns から 10 ns に向上した<sup>12,15)</sup>。

金属表面にアルカリ金属等を蒸着した場合の仕事関数に対する表面の電気 2 重層の寄与は、電子と陽電子で逆符号なことはよく知られている<sup>12)</sup>。W 表面でのポジトロニウム負イオン (1 個の陽電子と 2 個の電子の束縛状態) の生成が Na 蒸着によって劇的に増大する<sup>16)</sup> が、その理由を解明する上で、陽電子と電子の数が 1 個ずつの Ps の生成に対する Na 蒸着の効果を調べることは興味深い。蒸着による表面の電気 2 重層の変化は Ps の生成に影響しないだろうという単純な予想に反して、その生成率が大幅に増加し、表面まで戻った陽電子の大部分が Ps として放出されることが長嶋グループによって見出された<sup>12)</sup>。この現象の発見は、金属表面をカバーする 2 次元電子気体と陽電子の相互作用の問題として意義深い。また、陽電子を入射する

Recent results and development status of experiment stations at KEK Slow Positron Facility  
Ken WADA (Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)),  
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 PF  
TEL: 029-864-5661, E-mail: ken.wada@kek.jp

金属を高温にすると、表面からの Ps 放出量が増加することは以前から知られていたが、その理由は、表面状態にトラップされた陽電子の熱励起によるものと解釈されていた。しかし、Ps-TOF 装置によって生成する Ps のエネルギー分布を測定したところ、5 eV を最大エネルギーとする放出過程の Ps が増加した。これは明らかに熱励起によるものではない。この機構の解明についても、新しいテーマとして期待が大きい。

ビーム強度は必要だがその時間構造は問題とならない TRHEPD 実験には、ロングパルスモードのビームが用いられている。あらゆる物質で電子の結晶ポテンシャルエネルギーは負だが、陽電子の場合は逆の正であるため、ある臨界視射角以下で入射した陽電子は全反射する（電子では全反射は起こらない）。全反射条件で陽電子は物質最表面のみから反射するため、物質最表面原子層の構造解析を高精度で行なうことが可能である。たとえば Si に対して 10 keV の陽電子を入射した場合、臨界視射角は  $2^\circ$  だが、TRHEPD 実験では  $6^\circ$  程度以下の視射角で実験を行うので、 $2^\circ$  という臨界角は実用的に十分に大きい角度である。さらに臨界角を越えた視射角で入射すると、視射角に応じて陽電子はバルクに入っていくため、最表面原子層よりも下の層の原子配置の情報も得ることができる。

TRHEPD は、以前は反射高速電子線回折 (reflection high-energy electron diffraction, RHEED) の陽電子版という意味である、反射高速陽電子回折 (reflection high-energy positron diffraction, RHEPD) とよばれていた。最初の RHEPD 装置は、日本原子力研究開発機構 (JAEA) の河裾厚男らによって  $^{22}\text{Na}$  ベースの低速陽電子ビームにより実現化され開発が進んだ<sup>17,18)</sup> が、KEK の低速陽電子実験施設のビーム強度が 2010 年に 1 桁増大した後、同年に RHEPD 装置を JAEA から KEK に移設し<sup>2)</sup>、 $^{22}\text{Na}$  ベースのシステムと比較して、60 倍程度強い回折強度が得られるようになった<sup>4)</sup>。これにより、以前はたとえば Si(111)- $7 \times 7$  表面からの回折実験においてバックグラウンドに埋もれてみえなかった  $7 \times 7$  超構造に由来する分数次の回折スポットが明瞭にみえるようになり、全反射条件で観測された回折パターンが、予測されていたように実際に最表面原子層のみからの反射によるものであることが確認された<sup>7,8)</sup>。KEK 低速陽電子実験施設の高強度ビームにより RHEPD 実験が次の段階に進んだことから、その全反射条件での測定が可能という特徴を前面に押し出して、RHEPD にかえて全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) とよぶことにした。“TRHEPD” は「トレプト」と読む。

JAEA 河裾グループの望月 (現 KEK) らは、Ge(001) 表面に白金を蒸着して発現するナノワイヤの原子構造を確定した<sup>5)</sup>。最表面の一次元構造は蒸着した白金原子ではなく Ge が直線的に配列したことによるもので、白金原子はその下の表面原子第 1 層と第 3 層にもぐり込んでいることを明らかにした。また、この表面系の 100 K 付近における相転移前後の表面デバイ温度の確定にも成功した。たとえば STM では、最表面下層まで含めた詳細な構造や原子の種類が判別できないため、約 10 年にわたりこの構造については議論が続いていた。

河裾グループの深谷らは、Ag(111) 表面上に形成されたシリセンの構造の詳細を確定した<sup>6)</sup>。シリセンは Si が 2 次元的に格子を組んだグラフェン状の物質である。TRHEPD 実験により、理論計算で予測された、グラフェンとは異なる屈曲構造が確認され、その原子配置の詳細が TRHEPD により初めて明らかとなった。

まだ詳細が確定していない表面は世の中に豊富に存在し、かつ、触媒や次世代電子デバイス等の開発現場において、物質最表面および表面直下の原子構造の詳細な情報がますます重要となってきた。当施設では、論文執筆中のものも含め、複数の表面および表面近傍の原子配置を現在も確定しつつある。今後ますます TRHEPD の共同利用が増えていくものと思われるが、表面および表面近傍の構造解析でお困りの方は、共同利用に是非お申し込みを頂きたい。(共同利用申し込み方法については本稿末尾に記した。)

### 3 パルスストレッチセクションの開発の現状と今後 可能となる陽電子消滅実験

前節で紹介した成果は、パルス、あるいは大強度という当施設のビームの特徴をいかしたものである。低速陽電子ビームの利用法としてより一般的な陽電子消滅実験の実施は、パルスであることから、そのままではパイルアップの問題があって困難である。

現在、1  $\mu\text{s}$  のパルス幅 (ロングパルスモード) を 10 ms 程度まで広げるパルスストレッチセクションの開発が進行中である。パルスストレッチが可能となれば、陽電子消滅  $\gamma$  線同時計数ドップラー広がり測定を開始したい。たとえば、金属中の不純物ナノクラスター析出物、格子欠陥、高分子材料の空孔、試料界面などの情報を得るための化学分析が可能となり、表面研究、薄膜研究、イオン照射試料などの表面からの深さに依存した性質の研究分野での進展が見込まれる。

低速陽電子ビームのパルスストレッチは、10 eV 程

度の低エネルギーの低速陽電子ビームですすでに産総研で実現しているが、KEK では、これを 5 keV で行なえるようにする。当施設では、透過型リモデレータとよばれる、陽電子に対する仕事関数が負の W や Ni 薄膜を用いたビーム輝度増強が行なわれている。5 keV という数字は、この輝度増強に必要となる入射エネルギーであり、測定チャンパー等を接地電位のままで輝度増強ビームを使用できるメリットがある。当施設では、20 ms 間隔でやってくる陽電子パルスをいったんペニングトラップに溜め込み、出口のトラップ電極の電位はそのままに、トラップ電位を少しずつ上げていき、トラップした陽電子を徐々に下流側にこぼしていく方式をとる。出口のトラップ電極の電位を少しずつ下げる方式と比較して、エネルギーのより揃ったパルスストレッチビームが得られる予定である。すでに新たな配管と長さ 6 m の電極や新規のコイルなどの導入が完了しており、従来のパルスビームを使った実験は以前と同様にできている。来年度頭にはパルスストレッチの試験を行い、共同利用に供していきたいと考えている。

パルスストレッチができるようになると、さらにそれを高い繰り返し周波数で再バンチすること（高レート短パルス化）が可能となり、高効率の陽電子寿命測定が実現できる。陽電子はたとえば絶縁体中に打ち込まれると、その多くが熱化後に Ps を形成し、空孔にトラップされ、その寿命を測定することで空孔サイズを評価することができる。この手法はこれまで、特に直径 0.1 nm から 1 nm 程度の空孔サイズ評価に長年用いられてきたが、同じ空孔サイズであれば、空孔壁面の種類によらず Ps のピックオフ消滅率はかわらないということが暗黙の前提となっていた。最近、その前提の根拠となる、Ps の 1 回衝突あたりのピックオフ消滅確率がこれまで測定された全ての気体原子分子に対してほとんど変わらないという知見が得られた<sup>19)</sup>。また、0.1 nm から数 100 nm 程度までの大きな空孔サイズ評価にも使える理論の整備も進んでいる<sup>20)</sup>。

#### 4 まとめ

KEK 低速陽電子実験施設では、加速器ベースの高強度パルス低速陽電子ビームの共同利用が行なわれている。Ps-TOF 実験では、金属表面をカバーする 2 次元電子気体と陽電子の相互作用の新たな問題を提起する成果が上がっている。TRHEPD 実験では、他の手法ではわからなかった表面および表面近傍の構造が明らかになっており、今後さらに共同利用が広がることが期

待される。また、より一般的な陽電子消滅実験を効率的に行なえるよう、パルスストレッチセクションの導入を進めている。

#### 謝辞

KEK 低速陽電子実験施設の運営にあたって、東京理科大学の長嶋グループや日本原子力研究機構の河裾グループの皆様をはじめとする共同利用ユーザーの方々には一方ならぬご協力を頂きました。KEK 放射光科学実験施設 (PF)、KEK 加速器研究施設入射器グループ、KEK 放射線科学センターの皆様には、施設運営の全般にわたってサポートを頂きました。

本稿に関する研究の一部は、公益財団法人東レ科学振興会東レ科学技術研究助成、内閣府戦略的イノベーション創造プログラム (SIP)、日本学術振興会科学研究費助成事業基盤 (S) 24221007 の助成を受けたものです。

#### 共同利用の申込について

KEK 低速陽電子実験施設の 2015 年度後期 (10 月から 3 月) 開始の共同利用は、2015 年 5 月上旬締切で、KEK フォトンファクトリーを通じて共同利用の申請が可能です。詳細は当施設のホームページ (<http://pfwww.kek.jp/slowpos/>) をご覧の上、筆者までご連絡下さい。現在共同利用に供しているビームラインおよび装置は、以下の通りです。下記以外での利用についてもご相談に応じます。

- SPF-A3: 全反射陽電子回折装置
- SPF-B1: 低速陽電子ビーム汎用ステーション (ポジトロニウム負イオン実験で使用)
- SPF-B2: ポジトロニウム飛行時間 (Ps-TOF) 測定装置、他

#### 参考文献

- 1) 兵頭俊夫, 和田健, 「加速器」, 8 (2011) 3.
- 2) K. Wada, T. Hyodo, A. Yagishita, M. Ikeda, S. Ohsawa, T. Shidara, K. Michishio, T. Tachibana, Y. Nagashima, Y. Fukaya, M. Maekawa, A. Kawasuso, Eur. Phys. J. D, 66 (2012) 108.
- 3) K. Wada, T. Hyodo, T. Kosuge, Y. Saito, M. Ikeda, S. Ohsawa, T. Shidara, K. Michishio, T. Tachibana, H. Terabe, Y. Nagashima, Y. Fukaya, M. Maekawa, I. Mochizuki, A. Kawasuso, J. Phys.: Conf. Ser., 443

- (2013) 012082.
- 4) M. Maekawa, K. Wada, Y. Fukaya, A. Kawasuso, I. Mochizuki, T. Shidara, T. Hyodo, *Eur. Phys. J. D*, 68 (2014) 165.
- 5) I. Mochizuki, Y. Fukaya, A. Kawasuso, K. Yaji, A. Harasawa, I. Matsuda, K. Wada, T. Hyodo, *Phys. Rev. B*, 85 (2012) 245438.
- 6) Y. Fukaya, I. Mochizuki, M. Maekawa, K. Wada, T. Hyodo, I. Matsuda, A. Kawasuso, *Phys. Rev. B*, 88 (2013) 205413.
- 7) Y. Fukaya, M. Maekawa, A. Kawasuso, I. Mochizuki, K. Wada, T. Shidara, A. Ichimiya, T. Hyodo, *Appl. Phys. Express*, 7 (2014) 056601.
- 8) T. Hyodo, Y. Fukaya, M. Maekawa, I. Mochizuki, K. Wada, T. Shidara, A. Ichimiya, A. Kawasuso, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 505 (2014) 012001.
- 9) Y. Fukaya, M. Maekawa, I. Mochizuki, K. Wada, T. Hyodo, A. Kawasuso, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 505 (2014) 012005.
- 10) K. Michishio, T. Tachibana, H. Terabe, K. Wada, T. Kuga, A. Yagishita, T. Hyodo, Y. Nagashima, *Phys. Rev. Lett.*, 106 (2011) 153401.
- 11) K. Michishio, T. Tachibana, R. H. Suzuki, K. Wada, A. Yagishita, T. Hyodo, Y. Nagashima, *Appl. Phys. Lett.*, 100 (2012) 254102.
- 12) H. Terabe, S. Iida, K. Wada, T. Hyodo, A. Yagishita, Y. Nagashima, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 443 (2013) 012075.
- 13) Y. Nagashima, K. Michishio, H. Terabe, R. H. Suzuki, S. Iida, T. Yamashita, R. Kimura, T. Tachibana, I. Mochizuki, K. Wada, A. Yagishita, T. Hyodo, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 505 (2014) 012037.
- 14) 和田 健, *陽電子科学*, 3 (2014) 11.
- 15) K. Ito, R. S. Yu, K. Sato, K. Hirata, Y. Kobayashi, T. Kurihara, M. Egami, H. Arao, A. Nakashima, M. Komatsu, *J. Appl. Phys.*, 98 (2005) 094307.
- 16) Y. Nagashima, T. Hakodate, A. Miyamoto, K. Michishio, *New J. Phys.*, 10 (2008) 123029.
- 17) A. Kawasuso, S. Okada, *Phys. Rev. Lett.*, 81 (1998) 2695.
- 18) A. Kawasuso, T. Ishimoto, M. Maekawa, Y. Fukaya, K. Hayashi, A. Ichimiya, *Rev. Sci. Instrum.*, 75 (2004) 4585.
- 19) K. Wada, F. Saito, N. Shinohara, T. Hyodo, *Eur. Phys. J. D*, 66 (2012) 108.
- 20) K. Wada, T. Hyodo, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 443 (2013) 012004, and references therein.