

令和元年6月10日現在

機関番号：33907

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K04967

研究課題名(和文) 表面回折における入射電子波動場の基礎的研究

研究課題名(英文) Basic study of incident electron wave field in surface diffraction

研究代表者

堀尾 吉巳 (Horio, Yoshimi)

大同大学・工学部・教授

研究者番号：00238792

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：InP(111)A-(1×1)表面に対し、RHEED入射電子により励起されるオージェ強度の視射角依存性(BRAESプロファイル)を測定した。[11-2]方位でInとPのBRAESプロファイル上の強度異常は互いに類似する結果を得た。ロッキング曲線から表面二重層が0.1に圧縮していることが解析された。表面のInとPの原子列は接近し、それらの上の波動場強度が似ていることは実験結果を説明でき、オージェ強度異常と波動場との相関性を示す。

また、グラファイト(HOPG)表面に対する波動場計算の結果はBragg条件近傍でCのBRAESプロファイルに現れる強度異常と対応することがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般に反射電子回折法は入射電子が結晶表面で反射回折し、真空中に放出される電子群の強度に注目する。しかしながら、本研究では入射電子が結晶表面近傍に形成する電子密度分布(波動場)を実験及び計算から検証するものである。電子はX線とは異なり、固体表面原子との強い相互作用により、多重散乱を受ける。その結果、反射回折電子の強度は複雑で散乱の描像は難解である。本研究目的である波動場の検証は入射電子の結晶表面近傍での振舞いを理解することであり、多重散乱電子の複雑な起源を知ることは学術的に意義深いものである。また、それは原子識別を伴う新たな構造解析法や周期的原子励起に応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：The glancing angle dependence of Auger intensity (BRAES profile) excited by RHEED incident electrons was measured for the InP(111)A-(1×1) surface. At [11-2] azimuth, the intensity anomalies on BRAES profiles of In and P are similar to each other. The rocking curve analysis showed that the surface bilayer is compressed to 0.1. The atomic rows of In and P on the surface are close to each other, and the intensity of the wave field on them is similar. This can explain the experimental results and shows the correlation of Auger intensity anomaly with the wave field.

In addition, it was found that the result of wave field calculation for the graphite (HOPG) surface corresponds to the intensity anomaly on the BRAES profile of C near the Bragg condition.

研究分野：表面科学

キーワード：反射高速電子回折 波動場 オージェ電子

1. 研究開始当初の背景

研究代表者は既に 1983 年に Si(111)7×7 表面に対し、RHEED 励起されたオージェ電子強度を測定した。入射電子の視射角を変えながら測定したオージェ強度変化を BRAES プロファイルと名付けるが、そのプロファイル上には幾つかの強度異常が見出された。その後、各種表面構造や吸着表面構造に対して BRAES プロファイルを測定し、そこに現れる強度異常は入射電子が結晶試料表面に形成する電子密度分布、すなわち波動場の振舞いと相関することがわかってきた。本研究ではこれまで未着手であった二元結晶の InP(111)と層状結晶のグラファイトについて BRAES プロファイル上の強度異常と波動場との相関性について調べた。

2. 研究の目的

二元結晶である InP は In と P の各元素のオージェ信号を扱うことができるため、波動場分布が In 原子列上か P 原子列上のどちらに乗るかといった観点から各元素のオージェ強度異常と波動場との相関性をより詳細に調べる。

また、層状結晶のグラファイトでは one-beam 入射条件を用い、深さ方向の波動場の分布に注目した。このときの C のオージェ強度異常と波動場との相関性を調べる。

3. 研究の方法

用いた実験装置は基本真空度 1×10^{-9} Torr の超高真空 RHEED 装置にオージェ電子検出用のエネルギー分析器 (CMA) が設置されており、RHEED 図形の観察と同時に同一箇所のオージェ分析が可能である。本装置は入射電子の視射角をステップモータを用いて機械的に 0.1° 程度の刻み幅で変化させながら回折スポット強度のロッキング曲線と BRAES プロファイルの測定が可能である。

試料として用いた InP(111)A 表面は低融点であるため約 500 以上の高温加熱すれば In ドロプレットが表面に形成される。そこで、本研究では Ar スパッタリングと約 200 の低温アニールを併用して清浄化を行った。この表面の RHEED 図形は InP(111)A-(1×1)であった。約 500 のアニールで(2×2)表面構造が現れるが、In ドロプレットの形成が危惧されるため、ここでは低温アニールで得られる(1×1)表面を対象とした。一方、層状結晶であるグラファイト試料として HOPG を用いた。この清浄表面作成には特別に真空内で劈開する機構を自作し、それを用いた。

4. 研究成果

InP(111)A-(1×1)表面の原子構造はロッキング曲線と第一原理計算から解析された。その結果、表面の In は 30%程度欠損し、それにより表面二重層の間隔は理想的な 0.85 からほぼシート状の 0.1

まで圧縮緩和されている結果が得られた。この欠陥表面構造に基づいて波動場計算を行った。その結果を鏡面反射ピーム強度のロッキング曲線及び BRAES プロファイルとともに図 1 に示す。これらは全て [11-2] 入射方位のものである。(a)の実験による鏡面反射強度のロッキング曲線(実線)と(b)の計算結果(破線)とはよく対応していることがわかり、想定した構造モデルの妥当性が伺える。この構造を基に計算した表面の In 原子列上と P 原子列上の波動場強度をそれぞれ(c)と(d)に示す。両者はよく似たプロファイルを示し、注目すべきは共に π 及び $-\pi$ ロッドに起因する表面波共鳴 (SWR)領域の両閾値 Γ_T と Γ_V でピークが現れている。

Γ_T と Γ_V はそれぞれ結晶内と真空内の SWR 条件であり前者は InP の平均内部電位 13V を後者は真空の電位 0V を用いて視射角を計算した。これらのグラフと比較すべき In-MNN と P-LMM オージェ強度の BRAES プロファイルをそれぞれ(e)と(f)に示す。これらの実験 BRAES プロファイルも互いに類似して SWR 領域の両閾値付近で強度増大が見られる結果が得られた。また、In と P の原子列上の波動場強度の振舞いが類似していることは、表面二重層の圧縮緩和により両原子列がかなり接近した結果である。精度の改善が望まれるものの、これらの結果より In 及び P 原子列上の波動場強度とオージェ強度異常の振舞いに相関性があることがわかり、波動場によるオージェ励起の増大現象の確認ができた。

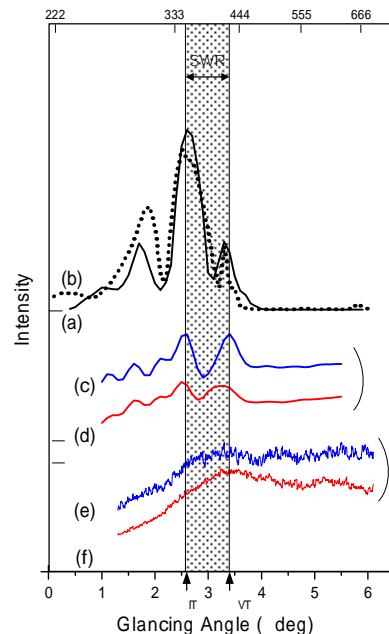


図 1 鏡面反射強度の実験(a)と計算(b)によるロッキング曲線、計算から得られた表面 In 原子列上(c)及び表面 P 原子列上(d)の波動場強度、そして In-MNN(e)と P-LMM(f)の BRAES プロファイル

一方、HOPG 表面は RHEED 及び LEED 共にモザイク表面を示すパターンが観察された。すなわち、HOPG 表面は表面に垂直な [001] 方向を回転軸として方位がランダムに回転する分域から構成される多結晶表面であることがわかった。従って、面内の周期性は無視でき、面直方向の原子位置のみに注目する one-beam 法が適用できる。ロッキング曲線の解析を行ったところ、原子面の面間隔はバルクと同様であることがわかった。HOPG 表面の波動場の深さ分布を視射角 $0.5^\circ \sim 6.5^\circ$ まで 0.1° 刻みで計算を行ったところ、図 2 に示す結果となった。ここで、004、006、008、0010、そして 0012 の各 Bragg 反射を満たす視射角はそれぞれ 1.2° 、 2.5° 、 3.7° 、 4.9° 、そして 6.0° である。図から入射電子の視射角が Bragg 反射条件を満たす近傍で強い定在波を形成し、視射角が僅かに変化するとその定在波の位相もシフトする様子が伺える。詳細に眺めると、Bragg 角より僅かに低い視射角で弱いながらも波動場の山が原子面 (L_1, L_2, \dots) 上に乗り、Bragg 角を僅かに越えると波動場の谷が原子面上に乗る様子が見られる。実験から得られた C の BRAES プロファイルはこのような Bragg 角近傍で強度異常が現れた。

以上、本研究では BRAES プロファイルの測定において、波動場が特定の原子列上に集中するときにオーグメント強度異常(増大)が見られ、波動場と BRAES との相関性が認められた。しかしながら、実験測定の精度向上、すなわち電子銃のより滑らかな視射角変化機構の導入と入射電子電流の安定性を追及する必要がある。また、非弾性散乱電子の影響を考慮することは、今後の課題である。

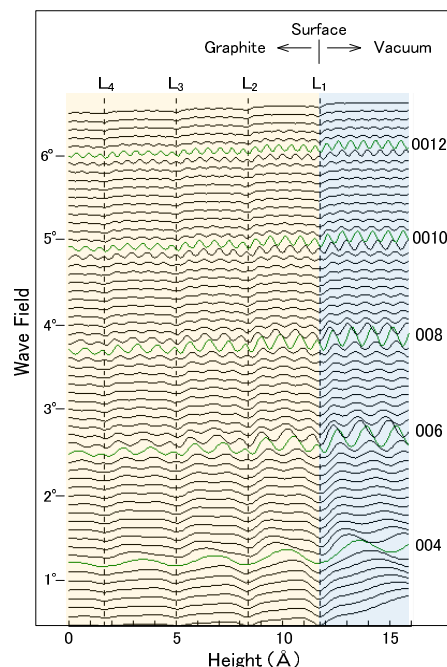


図 2 グラファイトの表面に侵入する入射電子波動場の視射角依存性。真空側も含め、表面第 1 層 (L_1) から第 4 層 (L_4) までを計算。

5. 主な発表論文等

(研究代表者は下線)

[雑誌論文](計 3 件)

1. Y. Horio, J. Yuhara, and Y. Takakuwa:

Structural Analysis of InP(111)A Surface using RHEED Rocking Curves, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 2019 (in press).

2. Y. Horio, R. Yamazaki, J. Yuhara, Y. Takakuwa, and M. Yoshimura:

Behavior of Wave Field on Graphite Surface Observed Using Reaction High-Energy Electron Diffraction Technique, e-J. Surf. Sci. Nanotech., 査読有, Vol. 16, 2018, pp. 88-92. <https://doi.org/10.1380/ejssnt.2018.88>

3. Y. Horio, J. Yuhara, Y. Takakuwa, S. Ogawa, and K. Abe:

Polarity identification of ZnO(0001) surface by reflection high-energy electron diffraction, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 57, 2018, 45701. <https://doi.org/10.7567/JJAP.57.045701>

[学会発表](計 26 件)

1. 堀尾吉己, 柚原淳司, 高桑雄二: InP(111)A-(1×1)の圧縮表面二重層に対する RHEED 波動場, 応用物理学会, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 2019 年 3 月 9 日, 東京工業大学(大岡山キャンパス).

2. 後藤峻太, 山崎 涼, 堀尾吉己: 中速電子回折用試料回転機構の開発, 日本表面真空学会, 第 18 回日本表面科学会中部支部学術講演会, 2018 年 12 月 15 日, 名古屋大学.

3. 堀尾吉己, 柚原淳司, 高桑雄二: InP(111)表面に形成される RHEED 波動場, 日本表面真空学会, 2018 年日本表面真空学会学術講演会, 2018 年 11 月 19 日, 神戸国際会議場.

4. Yoshimi Horio, Junji Yuhara, Yuji Takakuwa: Structural Analysis of InP(111)A Surface using RHEED Rocking Curves, The Japan Society of Applied Physics, 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-14) and 26th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM26), October 23, 2018, Sendai International Center.

5. 堀尾吉己, 柚原淳司, 高桑雄二: InP(111)A- 1×1 表面構造解析, 応用物理学会, 2018 年応用物理学会秋季講演会, 2018 年 9 月 18 日, 名古屋国際会議場.

6. 堀尾吉己, 柚原淳司, 高桑雄二: RHEED による InP(111)表面構造解析, 日本物理学会, 2018 年秋季大会, 2018 年 9 月 10 日, 同志社大学(京田辺キャンパス).

7. 堀尾吉己, 山崎涼, 高桑雄二: InP(111)表面の BRAES プロファイル, 日本物理学会, 第 73 回年次大会, 2018 年 3 月 24 日, 東京理科大学.
8. 堀尾吉己, 山崎涼, 高桑雄二: 中速電子回折における表面プラズモン損失, 応用物理学会, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年 3 月 19 日, 早稲田大学.
9. 山崎涼, 堀尾吉己: 反射電子回折法におけるエネルギー損失スペクトル, 日本表面科学会, 第 17 回日本表面科学会中部支部学術講演会, 2017 年 12 月 16 日, 名古屋大学.
10. Y. Horio, R. Yamazaki, J. Yuhara, Y. Takakuwa and M. Yoshimura: Wave Field on RHEED for Graphite Surface, The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8), Oct. 26, 2017, Tsukuba International Congress Center.
11. 堀尾吉己, 山崎涼, 柚原淳司, 高桑雄二, 吉村雅満: グラファイト表面に対する RHEED 励起オージェ強度, 日本物理学会, 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 24 日, 岩手大学.
12. 山崎涼, 堀尾吉己: 中速電子回折における表面プラズモンロス, 日本表面科学会 & 日本真空学会, 2017 年真空・表面科学合同講演会, 2017 年 8 月 18 日, 横浜市立大学.
13. 堀尾吉己, 山崎涼, 柚原淳司, 高桑雄二: グラファイト表面に対する RHEED 波動場, 日本表面科学会 & 日本真空学会, 2017 年真空・表面科学合同講演会, 2017 年 8 月 17 日, 横浜市立大学.
14. 堀尾吉己, 柚原淳司, 安部功二, 高桑雄二: 二元結晶表面に対する RHEED 波動場, 日本物理学会, 第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 18 日, 大阪大学.
15. 二村真史, 田島誠也, 堀尾吉己: プラズマ CVD による W 尖針の炭素ナノ構造体の形成, 日本表面科学会中部支部, 第 16 回中部支部学術講演会, 2016 年 12 月 17 日, 名古屋大学.
16. 田島誠也, 二村真史, 堀尾吉己: 液相析出法による TiO₂ 微粒子の形成と光触媒活性度の評価, 日本表面科学会中部支部, 第 16 回中部支部学術講演会, 2016 年 12 月 17 日, 名古屋大学.
17. 山崎涼, 二村真史, 堀尾吉己: InP(111)B 表面の加熱温度に対する形態・組成変化, 日本表面科学会中部支部, 第 16 回中部支部学術講演会, 2016 年 12 月 17 日, 名古屋大学.
18. 二村真史, 田島誠也, 堀尾吉己: プラズマ CVD による W 尖針上の炭素ナノ構造体, 日本表面科学会 & 日本真空学会, 2016 年真空・表面科学合同講演会, 2016 年 11 月 29 日, 名古屋国際会議場.
19. 田島誠也, 堀尾吉己: 液相析出法により形成された TiO₂ 粒子の形態, 日本表面科学会 & 日本真空学会, 2016 年真空・表面科学合同講演会, 2016 年 11 月 30 日, 名古屋国際会議場.
20. 山崎涼, 二村真史, 堀尾吉己: InP(111)表面の RHEED および MEED 観察, 日本表面科学会 & 日本真空学会, 2016 年真空・表面科学合同講演会, 2016 年 11 月 30 日, 名古屋国際会議場.
21. 堀尾吉己: X 線回折・電子回折, 応用物理学会東海支部, 表面分析セミナー「表面分析 (I) 回折・分光法」, 2016 年 10 月 28 日, あいち産業科学技術総合研究センター.
22. 堀尾吉己: (招待講演) 酸化亜鉛極性表面の RHEED 分析, 科学技術交流財団, 第 2 回「次世代デバイス実現に向けた先端二次元物質の物理と化学」研究会, 2016 年 10 月 21 日, 科学技術交流財団研究交流センター.
23. 堀尾吉己: 表面回折手法 (RHEED/LEED), 日本表面科学会, 第 62 回表面科学基礎講座「表面・界面分析の基礎と応用」, 2016 年 10 月 19 日, 大阪大学.
24. 堀尾吉己, 柚原淳司, 安部功二, 高桑雄二, 小川修一: RHEED による極性表面の識別, 応用物理学会, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 2016 年 9 月 16 日, 朱鷺メッセ (新潟).
25. 堀尾吉己, 柚原淳司, 高桑雄二, 小川修一, 安部功二: RHEED による ZnO(0001)極性表面の識別, 日本物理学会, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 13 日, 金沢大学.
26. 堀尾吉己: 電子回折法 (RHEED/LEED), 日本表面科学会, 第 61 回表面科学基礎講座「表面・界面分析の基礎と応用」, 2016 年 7 月 6 日, 東京理科大学.

〔図書〕(計 2 件)

1. 堀尾吉己 (分担): NTS、最新 実用真空技術総覧、2019 年、全 1096 ページ (担当は第 2 部 第 5 編 第 5 章 電子回折, pp. 834-843) .
2. Y. Horio (分担): Springer、Compendium of Surface and Interface Analysis、2018 年、全 853 ページ (担当は Chap. 57 Low-Energy Electron Diffraction, pp. 349-353 及び Chap. 85 Reflection High-Energy Electron Diffraction, pp. 527-530) .

〔その他〕

ホームページ等
堀尾研究室

<http://www.daido-it.ac.jp/~horio/index.html>

6 . 研究組織

研究協力者

〔主たる渡航先の主たる海外共同研究者〕

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

〔その他の研究協力者〕

連携研究者氏名：高桑雄二、柚原淳司

ローマ字氏名：Yuji Takakuwa、Junji Yuhara

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。