

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 16 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25410159

研究課題名(和文) ナノ結晶の電子スペクトルシミュレーターの開発と高速化

研究課題名(英文) Development of high-throughput electron simulator for nano crystals

研究代表者

吉川 英樹 (Yoshikawa, Hideki)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・極限計測ユニット・主席研究員

研究者番号：20354409

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ結晶体の光電子分光解析を目的とした干渉性弾性散乱効果を組み込んだMonte Carlo (MC) Simulationのコードを開発した。実用的な計算時間内で良好なS/N比の光電子スペクトルを求める為、光電子の生成と輸送の時間発展の順番を逆転させたアルゴリズムを導入した。この導入は均一な物質系では例があるが不均一系では初めてで、それによって結晶クラスターの可干渉サイズを決定するためのMean escape depthをLi, C, Si, Cu, Ag, Auの100eV～10keVの光電子について高い精度で求める事ができた。結果をデータベース化するためのデータフォーマットの検討も行った。

研究成果の概要(英文)：We have developed a new Monte Carlo (MC) simulation code for the quantification of X-ray photoelectron spectroscopy for nano crystals. The time-inverse algorithm of electron creation and transportation was applied to this MC simulation for the purpose of high-throughput calculation to realize good S/N ratio data. This algorithm has already been applied to a homogeneous system previously. It is the first time to apply it to an inhomogeneous system. We successfully developed the new MC code and calculated mean escape depths (MEDs) of 100 eV- 10 keV photoelectrons for Li, C, Si, Cu, Ag, and Au, which have good S/N ratio. The MEDs are useful to estimate coherent lengths of photoelectrons in nano crystals. The data format is also considered to make a database of calculated data.

研究分野：表面化学分析

キーワード：計算物理 分析化学 放射線, X線, 粒子線 表面, 界面物性

1. 研究開始当初の背景

X線光電子分光法などの表面分析法において、Monte Carlo (MC)シミュレーションは現在最も高精度な電子スペクトルの定量解析技術である。しかしながら、現在のMCシミュレーションは、結晶性試料が扱えないと言う問題があり、その問題を克服する手法を開発する必要がある。

2. 研究の目的

本研究は、放射光励起の硬X線光電子分光法などの最新の表面分析手法におけるナノ結晶薄膜の非破壊断層解析を目指した電子スペクトルシミュレーターの開発と高速化を行う。軟X線光電子分光から硬X線光電子分光をカバーする為、100 eV~10 keVまでの運動エネルギーを持つ光電子を対象とする。また、非破壊断層解析を対象としているため、上記の運動エネルギーを可変にした光電子を扱うだけでなく、(光電子の運動エネルギーは固定で) 角度分解をする測定条件も本シミュレーターで扱えるようにする必要がある。

3. 研究の方法

結晶性試料のMCシミュレーションを行うにあたり重要な基礎物理量は、電子の可干渉領域のサイズ決定である。そのサイズとして本研究では Mean escape depth (MED)を指標とすることにした。これは、光電子の emission angle が大きい場合や光電子の非対称パラメータ β の値が 2 に近い場合に、非弾性平均自由行程 (IMFP) を指標とすると角度分解の光電子スペクトルの計算強度に大きな誤差を生じる場合があるためである。

良く知られているように電子散乱のMCシミュレーションでは、最初に発生させた多数個の電子の中で検出器に入ったごく一部の電子を計算結果としてカウントする。そのカウント数でS/Nが決まる。試料を含む測定系に異方性があり、かつ角度分解測

定を行うことは、MCシミュレーションにおける取り込み立体角が小さいことを意味している。これはMC法でカウントされる電子数も少ないことを意味しており、S/Nの良い結果を得るには長時間の計算を必要とする。本研究は、最終的に全元素の全エネルギーでの光電子を対象とし、その結果の中でMEDなどの基礎的な物理量の結果をデータベース化して公開するとの目的もあるため、計算時間が長いことは問題である。その問題を解決するために、本研究ではMC法に時間反転による高速化アルゴリズムを導入した。時間反転とは、光電子の生成と輸送の時間を反転させ、光電子を検出される側から電子をMC法で追跡計算するもので、通常の方法と比べて計算効率が良い。この方法は、空間的な対称性が均一な系では報告例があるが、不均一な系では報告例がない。そこで本研究では、不均一な系で時間反転のアルゴリズムを組み込んだMC法を開発した。

4. 研究成果

上記の時間反転の高速化したMC法で、Li, C, Si, Cu, Ag, Auの物質の100eV~10keVの光電子についてMEDを計算した。なお、光電子発生時の角度分布を記述する非対称パラメータ β については、 $\beta = -1, 0, +1, +2$ の4つの条件で計算を行った。その結果の一部を、図1に示す。AuにおけるX線の入射角40度の時の1keV光電子に対するMED(図1上段)とX線の入射角85度の時の10keV光電子に対するMED(図1下段)の計算結果をemission angle別に示している。X線は非偏光で、 β の値を2としている。入射X線は非偏光で、入射角は85度、 β の値を2としている。図中の赤丸がMC法の結果、破線は従来用いられてきた式(1)に示すJablonski&Powellの近似式で求めたMEDの結果である。

$$D = (1 - 0.736 \omega) \lambda_{in} \cos \alpha \quad (1)$$

ここで、 λ_{in} はIMFPで、 ω は単一散乱アルベド、 α はemission angleを示している。黒色の実線は、今回のMC計算の結果から求めた λ_{in} 、 ω 、 α 、 β の4つのパラメータだけで記述される近似式である。なお、緑色の実線は、この近似式から α の項を除いて λ_{in} 、 ω 、 β の3つのパラメータだけで記述したより簡便化された近似式から求めたものである。本研究により、従来用いられて

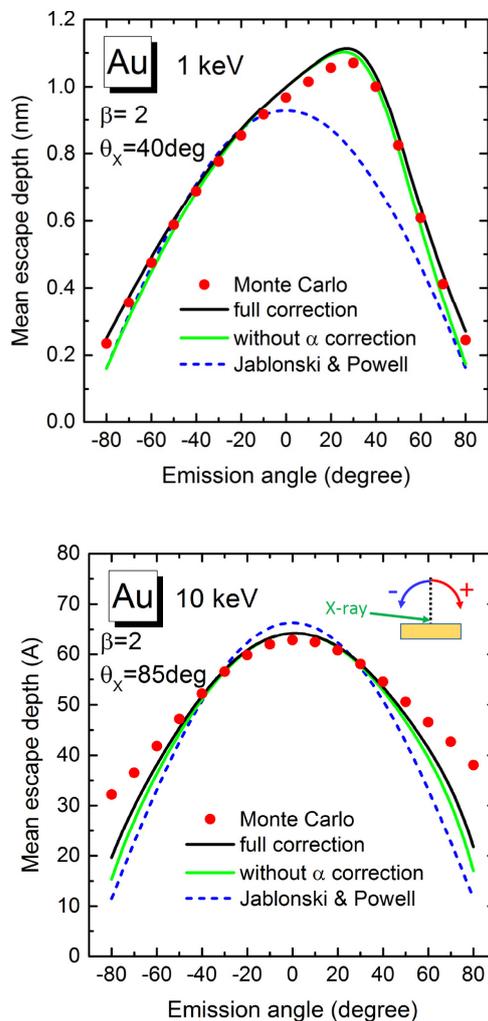


図1 AuにおけるX線の入射角40度の時の1keV光電子に対するMED(上段)とX線の入射角85度の時の10keV光電子に対するMED(下段)。X線は非偏光で、 β の値を2としている。

きたJablonski&Powellの式ではMC法で得た精密な結果と大きく異なることが分かった。「重元素試料でかつX線入射角が90度近く、かつ $\beta=+2$ 」と言う非常に特殊な実験条件(図1下段)を除けば、Li, C, Si, Cu, Ag, Auの物質の $\beta=-1, 0, +1, +2$ の条件下での100eV~10keVの光電子について約10%以内の誤差でMC法で求めた精密なMED結果を今回得た近似式は良く再現することが分かった。この成果は現在投稿準備中である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2件)

①吉川英樹, 田沼繁夫, 電子分光スペクトルの逆問題解法を目指して, 表面科学, 査読有, vol. 36, 2015, pp.521-526

② H. Yoshikawa, K. Yoshihara, D. Watanabe, H. Tanaka, and S. Tanuma, Proposal for common data transfer format for simulation softwares used in surface electron spectroscopies, Surf. Interf. Anal., 査読有, 2014, vol.46, 931-935.

[学会発表] (計 6件)

① H. Yoshikawa and S. Tanuma, "Mean escape depths for X-ray photoelectron spectroscopy in the wide kinetic-energies and emission-angles", 16th European Conference on Applications of Surface and Interface analysis (ECASIA16), Sept.28-Oct.1, 2015, Granada, Spain

②吉川英樹, 田沼繁夫, "電子分光シミュレーターの物質情報学への展開のためのデータベース構築", 第34回表面科学学術講演会, 招待講演, 2014年, 11月6日~8日, 松江

③ H. Yoshikawa and S. Tanuma, "Mean escape depths for X-ray photoelectron spectroscopy in the kinetic energy region from 0.1 to 10 keV and in the emission angle region up to 80 degree", 7th International Symposium on Surface Science, 2014年11月2日~6日, 松江

④吉川英樹, 高野みどり, 渡辺大介, 藺林豊, 田中博美, 陰地宏, 勝見百合, 木村昌弘, 吉原一紘, "XPS スペクトルデータベース構築のXPS WG活動報告", 実用表面分析講演会 PSA14, 2014年10月27日~28日, 御殿場

⑤吉川英樹, 渡部大介, 吉原一紘, 田中博美, 田沼繁夫, "表面分析スペクトルシミュレーターにおけるデータベース構築のための共通データフォーマットの提案", 真空・表面科学合同講演会, 2013年, 11月26日~28日, つくば

⑥ H. Yoshikawa, K. Yoshihara, D. Watanabe, H. Tanaka, and S. Tanuma, Proposal for common data transfer format for simulation softwares used in surface electron spectroscopies, 15th European Conference on Applications of Surface and Interface analysis (ECASIA15), Oct.13-Oct.18, 2013, Sardinia, Italy

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉川 英樹 (YOSHIKAWA Hideki)

国立研究開発法人物質・材料研究機構

極限計測ユニット・主席研究員

研究者番号：20354409