

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 5 月 27 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600086

研究課題名(和文)1粒のナノ結晶の構造解析

研究課題名(英文)Structure analysis of a single nano-crystal on the substrate

研究代表者

虻川 匡司 (Abukawa, Tadashi)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：20241581

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：1粒のナノ結晶の構造解析を行うためには、そのナノ結晶を回転させながら多数の電子回折パターンを測定することが必要になる。そのために、ナノ結晶をゴニオメーターの回転軸に100nm以下の精度で位置合わせでき、その状態でナノ結晶を軸に回転できる高精度4軸超高真空ゴニオメーターを開発した。これにより、ナノ結晶を回転しながら電子回折実験を行っても、ナノ結晶の位置がずれることがなく、1粒のナノ結晶の結晶構造解析が可能になる。

研究成果の概要(英文)：In order to determine the crystal structure of a single particle of the nano-crystal, it is required to measure many diffraction patterns as a function of the rotation angle of the crystal. A four-axes high-precision goniometer, which can adjust the position of the nano-crystal with high accuracy (< 100nm), has been developed in this research. The goniometer enables the structural analysis of the single particle of the nano-crystal.

研究分野：表面界面工学

キーワード：ナノ結晶 構造解析 電子回折

### 1. 研究開始当初の背景

小惑星「いとかわ」から持ち帰った微量の砂粒のように、極僅かしか無い物質の分析は非常に重要である。他にも、基板上に他の物質を成長させた時など、稀に特異な微結晶が成長することがある。このように、基板上に、非常に少ない頻度で特異なナノ結晶が成長する場合、そのような数の少ないナノ結晶の結晶構造解析は容易ではない。ビームを絞って1個のナノ結晶からの電子回折パターンの測定はできるが、それでは逆空間の一断面が得られるだけなので未知の結晶の構造を知ることはまず不可能である。

結晶を回転させて逆格子空間マップの測定を行うのは回折結晶学の基本であり、X線回折ではワイゼンベルグカメラなど様々な測定手法が開発されている。これらは大気中に置かれる大型の多軸で精密な試料ゴニオメーターに支えられて発展してきた。ところが電子回折では、試料を真空中に配置しなければならないために、X線回折装置のように大きくて精度の高いゴニオメーターを組み込むのが難しい。そのために、電子回折における試料回転機構は簡易的なものが多く、これまで試料を精密に回転して逆格子マップを測定する手法はあまり発展してこなかった。本研究では、試料結晶の方位角を回転しながら回折パターンを測定するワイゼンベルグカメラの原理を電子回折に応用して、3次元的な逆格子マップを測定するワイゼンベルグ反射高速電子回折法を開発し、3次元逆格子マップから表面構造の解析を行ってきた(図1)。本研究は、その手法を発展させてマイクロビーム電子線を用いることによりナノ結晶の構造解析を行うものである。

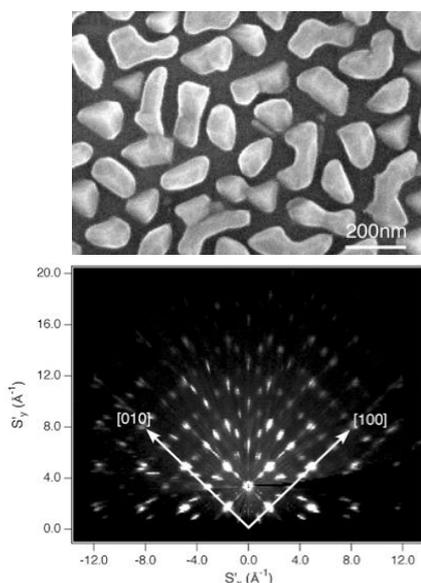


図1 Si基板に成長した FeSi<sub>2</sub> ナノ結晶のSEM像とワイゼンベルグ法で得られた3D逆格子マップの断面。

大きな結晶では、結晶を回転して多数の回折パターンから3次元的な逆格子空間マップが作成できるが、基板上のナノ結晶では回転するとナノ結晶がビームから外れてしまう。ナノ結晶の位置を動かさずに、そのナノ結晶を中心に方位角方向に回転できるような精度の高い超高真空対応ゴニオメーターがあれば、1粒のナノ結晶の逆格子マップが測定できるようになる。逆格子マップが得られれば、ナノ結晶の結晶格子や対称性は直ちに求められる。また、フーリエ変換を基本にした解析法により、簡単に構造を決定できる。1個のナノ結晶を軸に回転できる高精度ゴニオメーターの開発が待たれていた。

### 2. 研究の目的

非常に小さな結晶の構造解析は、これまでもX線を細く絞ったX線回折や、細い電子ビームを使用した透過電子回折によって行われて来たが、1粒のナノ結晶を回転して構造を解析することはあまり考えられて来なかった。一方、走査電子顕微鏡は小さな結晶などの外形を観測できる手法であるが、電子回折を組み合わせると結晶構造解析に用いられることは少ない。そこで本研究では、図2に示すように走査電子顕微鏡でとらえたナノ結晶に対して電子回折法を適用して、結晶構造解析を行う。このとき、走査電子顕微鏡で1個のナノ結晶を特定して、その結晶をビームから外すことなく360°回転することで、3次元的な逆格子空間マップを測定し構造を決定するというのが本研究のアイデアである。

したがって、本研究は、走査電子顕微鏡などで、ナノ結晶をその中心軸で回転して電子回折が測定できる超高真空ゴニオメーターを開発することが目的である。そしてそれを用いて基板上に置いた1粒のナ

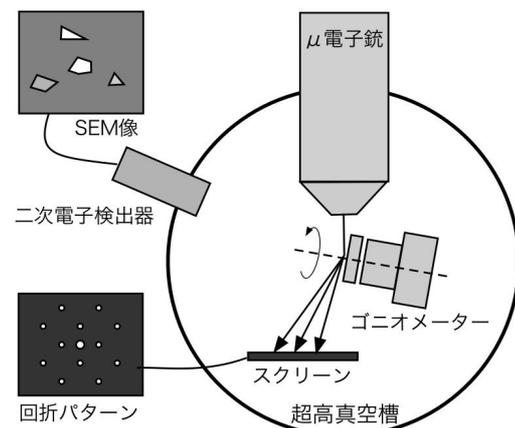


図2 ナノ結晶の構造解析を行う走査電子顕微鏡装置の模式図



ている。結晶構造を調べたいナノ構造を走査電子顕微鏡でとらえて、その場所の結晶構造解析が可能になれば、ナノ構造の作成方法の最適化などのエンジニアリングに貢献できる。

## 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)

K. Mukojima, S. Kanzaki, K. Kawanishi, K. Sato, T. Abukawa, Streak-camera reflection high-energy electron diffraction for dynamics of surface crystallography, *Surface Science* 636, (2015) 25–30,

doi:10.1016/j.susc.2015.01.017、査読有

S. Kono, H. Kodama, K. Ichikawa, T. Yoshikawa, T. Abukawa, A. Sawabe, Electron spectro-microscopic determination of barrier height and spatial distribution of Au and Ag Schottky junctions on boron-doped diamond (001), *Jpn. J. Appl. Phys.* 53, 05FP03 (2014). doi:10.7567/JJAP.53.05FP03、査読有

[学会発表](計 7件)

T. Abukawa, Surface structure determination by three-dimensional Patterson map: Au and In on Si(111) surface, The 7th International Symposium on Surface Science, Japan, Matsue, (2014.11.2-2014.11.6).

Ryo Kadowaki, Misaki Kuriyama, Tadashi Abukawa, Keisuke Sagisaka, Daisuke Fujita, PEEM and micro PES study of Graphene growth on Ni(110) substrate, The 7th International Symposium on Surface Science, Japan, Matsue, (2014.11.2-2014.11.6).

虻川匡司、ストリークカメラ反射高速電子回折法による表面構造ダイナミクス観測、第10回励起ナノプロセス研究会、ニセコ町、(2014.9.21-2014.9.22)。

虻川匡司、金属吸着半導体表面の構造解析、日本物理学会 2014 年秋季大会、春日井市、(2014.9.7-2014.9.10)。

向島健太、虻川匡司、ストリークカメラ反射高速電子回折法による Si 表面の観測、日本物理学会 2014 年秋季大会、春日井市、(2014.9.7-2014.9.10)。

Shinji Kanzaki, Kenta Mukojima, Tadashi Abukawa, Existence of In double layer on Si(111)- $7\times 3$ -In surface, 11th International Conference on the Structure of Surface, Coventry (UK), (2014.7.21-2014.7.25).

神崎慎二、向島健太、虻川匡司、ワイゼンベルグ RHEED による Si(111)- $7\times 3$ -In 表面の構造モデルの検討、平成 25 年度日本表面科学会東北・北海道支部学術講演会、仙台市、(2014.3.10-2014.3.11)。

[図書](計 0件)

[産業財産権]

出願状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

虻川 匡司 (ABUKAWA, Tadashi)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授  
研究者番号：20241581

(2)研究分担者

無し

(3)連携研究者

無し