

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：14403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26790067

研究課題名(和文) 高速イオンビーム表面チャネリング法によるDIETモフォロジーの定量測定

研究課題名(英文) Measurements of the DIET morphologies by a method of surface-channeling of fast ions

研究代表者

深澤 優子 (Fukazawa, Yuuko)

大阪教育大学・教育学部・准教授

研究者番号：50379327

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：電子線照射により電子遷移誘起脱離が起こったアルカリハライド表面には単原子層矩形ピットが形成され、表面が一層ごとに剥離する。この表面に高速イオンビームを斜入射し、散乱強度の変化を測定することにより、1層脱離に必要な照射量を見積もった。また、矩形ピットを導入したモデル表面でイオン軌道計算を行い、実験結果と比較することで脱離の各段階でのピットの存在による表面ステップ密度や表面形状を予想した。

研究成果の概要(英文)：Desorption induced by electronic transitions (DIET) resulting from the irradiation of electrons changes the morphology of the surface. As the result of the DIET, the surface of alkali halide crystals is covered by rectangular pits of monolayer depth with edges oriented along the crystallographic directions. In order to investigate the change of the surface morphology by the electron irradiation, the specular intensity of scattering yields of fast protons scattered on a surface under the surface-channeling conditions was measured. Because desorption proceeded in a layer-by-layer mode, desorption rates of surface atoms were the reciprocals of electron fluences corresponding to the desorption of all atoms arranged on the surface monolayer. Fluences were obtained from oscillation periods of the specular intensity of scattering yields. The surface morphologies were partly evaluated with comparisons of computer simulation and experimental results.

研究分野：放射線物理学

キーワード：イオンビーム 表面チャネリング 格子欠陥 電子遷移誘起脱離 アルカリハライド 表面モフォロジ

1. 研究開始当初の背景

アルカリハライド結晶表面にX線や電子線、荷電粒子などを照射すると、結晶内部で電子系の励起が起こり、結晶表面から原子が脱離する。これを電子遷移誘起脱離 (Desorption Induced by Electronic Transitions, DIET) といい、照射線種や標的によって、さまざまな脱離機構が提案されている。DIETが起こったアルカリハライド結晶の表面モフォロジーの変化や放出原子収量の電子線照射量依存は、これまで詳しく調べられてきた^{1),2)}。表面から結晶内部に深く入り込んだ電子がつくる欠陥が、表面まで拡散し、低配位の原子を優先的に脱離させる。とくにKBrについては非接触原子間力顕微鏡 (NC-AFM) による観察例が多く報告されており、電子線や光照射によって、単原子層の厚さの矩形ピットを形成しながら表面原子を1層ごとに剥離させることができることがわかっている。この矩形ピットの大きさや数密度を制御することで電子デバイスのテンプレートへの応用³⁾や配向のそろった分子の吸着⁴⁾等が考案されている。我々も表面形状を制御した表面に成長する微粒子の初期成長過程についての知見を得るために、欠陥を生成した表面に蒸着した金ナノ粒子の形状や結晶性を調べており、実験過程において表面モフォロジーの評価にイオンビームが活用できることを見出した。

2. 研究の目的

イオンビーム散乱実験と欠陥が生成された表面のモデル、イオン散乱シミュレーションを組み合わせるにより、イオンビームをプローブとした簡便な表面モフォロジーの定量測定を可能にすることを目的として実験・研究を行った。

3. 研究の方法

(1) 高速イオンビームによる表面チャネリングを用いた層状脱離周期の測定

十分にコリメートした高速イオンビームをアルカリハライド表面にすれすれの角度で入射し、鏡面反射したイオンビームを検出し、その散乱強度分布のピークの散乱角での散乱強度を測定した。一定の電子線照射量での電子線照射とイオンビーム入射を交互に行い、電子線照射量と散乱強度の関係を調べた。電子線照射量の増加とともにイオンビームの散乱強度は振動し、その振動周期は表面一層が脱離するのに必要な照射量であることはすでにコンピューターシミュレーション結果と比較することで確認していた⁵⁾。表面原子の脱離は、電子線照射により固体内で生成された欠陥が拡散し表面に到達して起きることから、電子線照射時の試料温度を変えて振動周期を測定し、結晶内部に生成された欠陥拡散の活性化エネルギーを見積もった。

(2) 脱離が起きた表面で散乱するイオンの軌道計算

表面に矩形ピットを導入した表面で散乱したイオンの軌道計算を行い、散乱パターンと散乱強度の変化を調べた。実験結果と比較することにより、脱離の各段階でのピットの存在による表面ステップ密度や表面形状を予想した。

(3) 脱離表面のレプリカ TEM 観察

電子線照射後のアルカリハライド表面に金の微粒子をつけると金微粒子は矩形ピットの輪郭に集まって留まる性質を利用し、表面のレプリカをとることができる。様々な試料温度で電子線照射した表面のレプリカを透過型電子顕微鏡で観察し、矩形ピットサイズの試料温度依存を調べた。

4. 研究成果

(1) 図1にイオンビームの散乱強度の振動を示す。振動の一周周期が1層脱離に必要な電子線照射量である。電子線照射時の試料温度を変えて測定すると、図のように試料温度が高くなるにつれ、周期が短くなった。図2は欠陥拡散の活性化エネルギーを見積るために、様々な試料温度で脱離周期を測定し、測定した周期の逆数をアレニウスプロットに乗せたものである。400Kを超えたところで傾きが緩やかになった。これは温度を変えることで表面に形成される矩形ピットの大きさと密度が変化し、優先的な脱離サイトであるステップエッジ部の原子の数が変化したためである。表面でピットを形成している原子が移動し、ピットが連結して大きくなる効果が考えられる。温度が低いときは試料内部から拡散してきた欠陥が表面に到達し、矩形ピットを密に形成して、ステップエッジ部から脱離していくことでピットが大きくなり、連結するが、温度が高くなると表面の原子が移動しピットが連結することで配位数の小

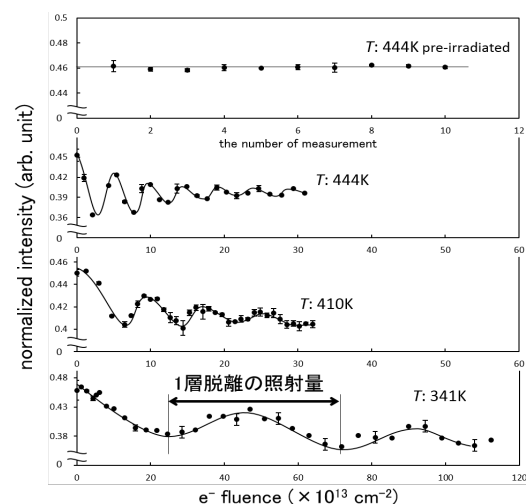


図1 散乱強度の振動
結晶温度を変えると振動周期が変わる

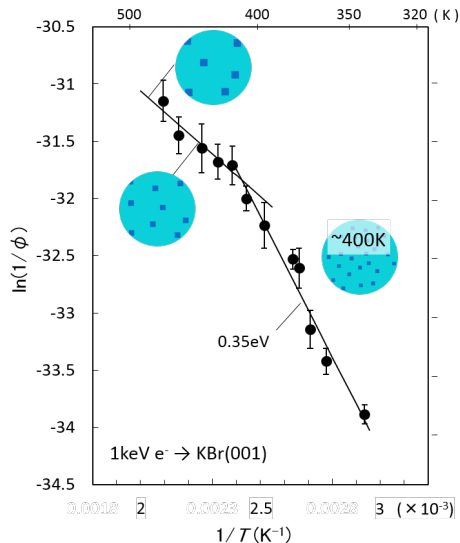


図2 振動周期(φ)のアレニウスプロット
脱離の初期に予想される表面形状とともに示した。高温では小さなピットが連結し、ステップエッジの位置にある原子が少なくなる

さい原子が少なくなり、脱離する原子の数が減り振動周期が長くなるため傾きが小さくなると予想した。

(2) 矩形ピットを導入した脱離モデル表面とその表面で散乱したイオンビームの散乱強度の計算結果を図3に示す。散乱強度の振動構造は実験結果をよく再現した。散乱強度の振動にモデル表面のステップ密度を重ねて示すと、ステップ密度も散乱強度と同じ周期で振動した。これらの計算結果を実験結果と比較することで脱離の各段階での表面の様子を予想することができた。

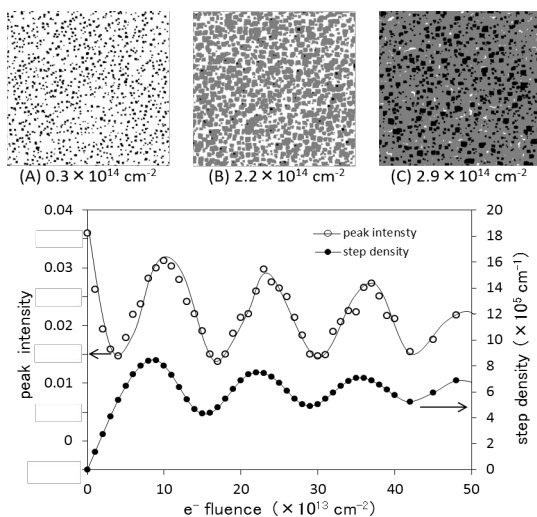


図3 脱離モデル表面に入射したイオンの軌道計算から求めた散乱イオン強度振動とモデル表面のステップ密度

脱離の初期は矩形ピットがランダムに形成され、電子線照射量の増加とともに矩形ピットのステップ部分から優先的に脱離させるモデル表面を作製した。モデル表面に入射し散乱するイオンの軌道計算を行った。

(3) イオンビーム散乱実験から試料温度が高いとき、表面でピットを形成している原子が移動し、ピットが連結して大きくなる可能性が予測されたため、脱離の初期に形成される矩形ピットのサイズをレプリカ TEM 観察した。図4はそれぞれ0.5層、1.5層脱離する照射量で電子線照射した KBr(001)表面のレプリカ TEM 像から得られた矩形ピットサイズの試料温度による変化を調べたものである。矩形ピットのサイズは温度が上がるにつれて大きくなる傾向が見られた。今後は脱離のごく初期でのピットサイズを詳細に観察していく予定である。

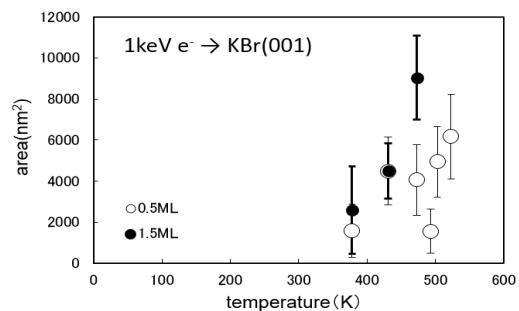


図4 矩形ピットサイズの温度依存
試料温度が高くなるにつれ、ピットの面積が大きくなった。

これらの成果からイオンビームをプローブとした表面モフォロジーの測定の一部定量測定が可能になった。また、電子線照射時の試料温度と照射量を適切な条件にすることで、表面にサイズや密度を制御した矩形ピットを形成できることが期待できる。

<文献>

- 1) M. Szymanski et al. Prog. Surf. Sci. 67 (2001) 123.
- 2) M. Goryl et al. Surf. Sci. 593 (2005) 147.
- 3) Mativetsky et al. Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 233121.
- 4) L. Nony et al. Nano. Lett. 4 (2004) 2185.
- 5) Y. Fukazawa, K. Kihara, K. Iwamoto, and Y. Susuki, Nucl. Instr. Meth. B (2013) 60

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)

Y. Fukazawa, Y. Toba and Y. Susuki
A Simple Image Intensifier Prepared for the Transport of Nano-Ampere keV Ion Beams
J. Vac. Soc. Jpn. 査読有り, No.58 (2015),

pp. 140-143
DOI: <http://doi.org/10.3131/jvsj2.58.140>

Yuuko Fukazawa, Takuya Nishiguchi and Yasufumi Susuki
Rectangular pits created on KBr(001) surface by electron stimulated desorption and imaged by Au decoration and C replication
J. Vac. Soc. Jpn. 査読有り No. 59 (2016), pp. 87-91
DOI: <http://doi.org/10.3131/jvsj2.59.87>

〔学会発表〕(計7件)

深澤優子, 鈴木康文
斜入射高速陽子による電子刺激脱離 KBr(001)表面形状・粗さ変化の追跡
日本物理学会2014年秋季大会2014. 9. 8, 中部大学春日井キャンパス(愛知県春日井市)

深澤優子, 鳥羽由梨恵, 鈴木康文
keV領域のnAイオンビーム輸送のための手作りイメージインテンシファイア
第55回真空に関する連合講演会, 2014. 11. 19, 大阪府立大学 I-site なんば(大阪府大阪市)

Y. Fukazawa and Y. Susuki
Temperature dependence of ESD rate from KBr(001) surface measured by fast proton scattering technique
「イオンビームによる表面・界面解析」特別研究会, 2014. 12. 6, 筑波大学研究基盤総合センター(茨城県つくば市)

深澤優子, 鈴木康文
電子刺激脱離 KBr のバルク・表面での欠陥拡散過程に対する検討
日本物理学会第70回年次大会 2015. 3. 24, 早稲田大学(東京都新宿区)

西口拓矢, 深澤優子, 鈴木康文
電子刺激脱離 KBr 表面に形成される矩形ピットのレプリカ TEM 観察
日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015. 9. 16, 関西大学千里山キャンパス(大阪府吹田市)

深澤優子, 西口拓矢, 鈴木康文
電子刺激脱離したアルカリハライド表面の金デコレーションレプリカ TEM 観察
第56回真空に関する連合講演会, 2015. 12. 2, 筑波国際会議場(茨城県つくば市)

中川諒季, 西口拓矢, 深澤優子, 鈴木康文
電子刺激脱離した表面の形状観察に向けた散乱 keV 陽子の検出
日本物理学会第71回年次大会, 2016. 3. 19 東北学院大学泉キャンパス(宮城県仙台市)

(1)研究代表者

深澤 優子 (Fukazawa Yuuko)
大阪教育大学教育学部・准教授
研究者番号: 50379327