

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13365

研究課題名(和文) 低速原子散乱による絶縁体表面原子イメージ画像のリアルタイム測定

研究課題名(英文) Real time measurements of atomic insulator surface structure using low energy atom scattering spectroscopy

研究代表者

梅澤 憲司 (Umezawa, Kenji)

大阪府立大学・私立大学の部局等・教授

研究者番号：80213487

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：低速原子散乱分光装置を用いて絶縁体表面第1原子層から第3原子層に位置する原子構造をイメージ画像で観察するための研究を行いました。イメージ画像のためのデータ収集が、できるだけ短時間で終わるよう試料を設置するマニピュレータ開発を中心に実施しました。試料は、360度全方位に回転できるように、様々な角度から観たデータを収集できるようになりました。イメージ像の画像分解能によりますが、30分程度で収集できるところまで研究が進みました。

研究成果の概要(英文)：We thus have been developed low energy atom scattering spectroscopy (less than 5 keV) for the analysis of insulator surfaces. Low energy atom particle beams were projected onto the sample surfaces to avoid charging effects. In this research, we have been developed the manipulator for insulator samples. The developed one can be rotated for 360 degree in the azimuth angles. Thus, data can be collected for any particular angle to see "atomic structure" of insulator surfaces. So far it takes about 30 min. or more to see the image of insulator surfaces.

研究分野：表面科学

キーワード：低速原子散乱 絶縁体 表面構造

### 1. 研究開始当初の背景

世界において表面科学は過去 30 年間以上半導体、金属表面の研究が主流であった。21 世紀の材料開発において未開拓な研究領域は、絶縁体表面原子構造解析及び、電磁場中に設置された固体表面原子の構造解析である。

従来用いられてきた電子線、イオンビームは、電荷蓄積効果(チャージアップ)のため電気を通しやすい物質しか表面科学の研究対象とならなく、電気を通しにくい物質:絶縁体、ワイドバンドギャップな物質を研究対象にできなかった。そこで世の中に必要な分析装置が電氣的に中性な原子ビームを用いた表面原子構造解析装置であった。

「何故、原子ビームなのか?」。答えは、原子ビームは電氣的に中性なために試料の電氣的特性(導体、半導体、絶縁体)に関係なく照射することが可能だからである。

申請者自らが低速原子散乱装置に係わる計測用電子回路設計、プログラム開発、インタフェースボード設計まで独自に開発に取り組んできた背景がある。ブラックボックスを用いた実験装置が多い中、できるだけブラックボックスを少なくし、研究者にとっても装置の仕組みがよく理解できる分析装置は、年々少なくなっているという背景がある。新しい現象を観察するためには、研究者が自ら装置を作り上げることが大切であると考える。このような背景のもと、申請課題を遂行することとなった。

### 2. 研究の目的

課題の研究目的は、絶縁体表面、電磁場中の金属・半導体表面原子構造(第 1~第 3 層表面原子)をリアルタイムでイメージ画像化する装置の開発である。プローブには、電氣的に中性で電荷をもたないパルス化された原子ビームを用いる。従来の電子線やイオンビームは、電荷蓄積効果のために電気を通しやすい物質(金属、半導体)しか研究対象とならなかった。しかし、申請課題は、絶縁体表面や電磁場中の材料表面を研究対象とできる。

エネルギー領域が数 keV の低速原子ビームは、散乱に伴う軌道半径が 2-3 Å 程度で原子間距離とほぼ同等であり、0.1Å 以下の空間分解能で原子間距離を測定できる。動的に変化しつつある表面の元素組成と構造の同時測定が可能である。

### 3. 研究の方法

装置開発の詳細を説明する。まず最初に、3keV-4He<sup>+</sup> イオンビームは偏向板に+ 50V の印加電圧を 100 kHz の周波数で発振させてパルス化する。パルス化直後に中性化室で気体 4He にさらすことで 3keV-4He<sup>0</sup> を生成する。パルス発振器は、高速 FET である 2SK1132、2SJ165 を用いたものを使う。プリアンプは、電流帰還型の高速度オペアンプを使う。検出器である MCP に印加電圧 +3 kV をかけるため、直流電圧と MCP からの微小信号を分離する高压用コンデンサーを内蔵させ、微小信号のみ

を分離して受信する。次に信号の検出について説明する。MCP の中心部には、直径 5mm の穴が開いており、この穴を通して入射プローブであるパルス化された 3keV-4He<sup>0</sup> 原子ビームが絶縁体試料に入射する。

本装置では、MCP と試料との距離を 20 cm とする。MCP 自身が直径 30mm の形状を有する。MCP の角半径方向がもつ角度は、±1° 程度であるためほぼ 180° 後方散乱での検出となる。原子のイメージ画像を取得するにあたり、原子ビームを偏向して試料の照射領域を変更することはできない。

そこで、入射ビームは、常に一定の方向からであるという前提のもとに試料を取付けるマニピュレータをできるかぎり自由自在に回転できるように作製した。具体的には、マニピュレータにおいて Polar 角度及び面内角度が自由に回転できるように工夫した。Polar 角度も面内角度も各々が独立して 360° 回転できるように製作した。ただし、Polar 角度については、複数回の周回はできない。どうしてもマニピュレータ内部にある線との関係で 0~360° の変化が限界となった。しかし、面内回転については、360° を超えて何周でもできるようにした。この点だけでも画期的なマニピュレータであると考えられる。マニピュレータは、トルクが強く安定して働くステップモータを通じてコンピューター制御されるよう設計した。さらには、試料が 1200 °C まで加熱できるように設計をした。

続けて、試料交換に要する時間が問題となった。実験は、超高真空にてされるため、試料を真空チェンバーから大気へ取り出すにあたり、真空チェンバー全体を大気にさらさなければならなかった。この場合、交換後の新しい試料を真空チェンバーに戻し真空チェンバーを 150 °C 程度の温度で約 48 時間ベイクングをし、冷却後にチェンバー内部の部品にたまっている二酸化炭素などのガスだしをする作業を要した。この作業に約一日を要した。つまり、試料を交換するたびに、約 4 日間程度の時間を要した。これは、非常に非効率な実験作業である。そこで、試料交換の度に真空チェンバーを大気にさらす必要がないよう、メインの真空チェンバーのそばに試料交換用の小型真空チェンバーを付けた。メインの真空チェンバーが直径 40cm ほどあるのに対して小型真空チェンバーは、直径が 15cm 程度である。試料交換の際に試料は、いったん小型チェンバーへ移動させる。移動させた後、メイン真空チェンバーと小型真空チェンバーとの間を真空バルブで閉じてしまい、メイン真空チェンバーから切り離してします。こうすることで、メイン真空チェンバーの真空度を超高真空に保ったままにすることが可能となった。小型真空チェンバーに移動させた試料を大気に取り出すこととした。その後交換用の新しい試料を小型真空チェンバーに入れて真空ポンプで真空を 10<sup>-6</sup>

Pa 程度まで引く。次に小型真空チェンバーとメイン真空チェンバーとの間にあるバルブを開けて、試料をメイン真空チェンバーへ移動させるようにした。なお、試料の移動は、ロードロック方式で行った。このような作業工程により試料交換に4日間程度かかっていたのが、3時間あまりでできるようになった。

絶縁体表面のイメージ画像の取得については、主に90x90ピクセルで取るようにした。これでも8100ポイントからの情報を収集することとなる。実際には、各ポイントにおいて、飛行時間スペクトルを取り、標的原子により得られた飛行時間スペクトルの位置の強度計算をパソコンに行わせた。1点につきマニピュレータの回転を含めて0.5秒以下であった。実際には、計測時間のほとんど、常に試料がマニピュレータ上で様々な角度に回転している状況であった。

#### 4. 研究成果

試料を取付けるマニピュレータは、Polar 角度及び面内角度の両方ともステップモーターにより0.2度の角度分解能をもってコンピュータ制御できるようになった。低速原子散乱の場合、入射エネルギーが3keVと低いと、散乱軌道が原子との相互作用で形成するシャドーコーンの半径は、2オングストローム程度あるため、0.2度という角度分解能は、十分過ぎる。1度でも十分に計測可能な角度である。今回は、Polar 角度及び面内角度の両方において角度分解能が0.2度となったことが研究成果の一つとなる。

2番目にマニピュレータが、安定して働き絶えず回転するという動きにおいても試料位置がマニピュレータからずれるということがなくなったことである。

3番目にプリアンプが安定して働くようになったことである。高速オペアンプを使うことにより信号の立ち上がり立ち下り時間がnsecレベルとなり信号の切れがよくなった。

4番目に原子ビームによる残留ガスの除去ができたことである。原子ビームは電氣的に中性なため偏向板に電位をかけてもイオンビームと違い曲がること無い。実際のパルス化においては、イオンビームを偏向板でパルス化させた後にガスによる電荷交換過程を通じて中性化させているため、どうしても残留する電氣的に中性な粒子が残る。同様なことがイオン銃内でも起こっていた。最初にイオン銃にヘリウムガスを導入しヘリウムイオンを生成させる。この際に、イオン銃の出口付近では、イオン化されたヘリウムが気体のヘリウムと衝突するため電荷交換反応により中性なヘリウム残留ガスができることになる。この電氣的に中性なヘリウム残留ガスは、偏向板で曲げられることなく、そのまま直進し最終的には、絶縁体試料に到達する。すなわち、パルス化されることなく、計測中、常に電氣的に中性な残留ヘリウムガスが試料に照射されることとなる。照射後に後

方に散乱され検出器MCPに到達したものは、飛行時間スペクトルにおいてバックグラウンド信号として検出され、本来の信号において邪魔な存在となる。そこで、ビームライン上の真空配管を角度において1度オフな状態を作る特殊な真空配管を発注しビームライン上に取付けた。

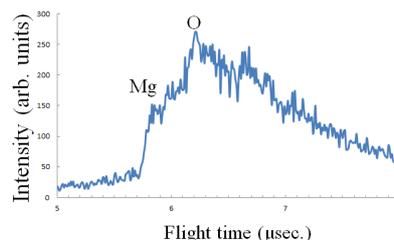


図1 飛行時間スペクトル

図1は、MgO(111)試料から得られた飛行時間スペクトルを示す。飛行時間5.5µsec付近に存在する信号が電氣的に中性な原子ビームから得られたバックグラウンド信号である。Mg及びO信号と比較する十分に小さいことがわかる。

低速原子散乱装置全体の仕様は、図2のようになる。

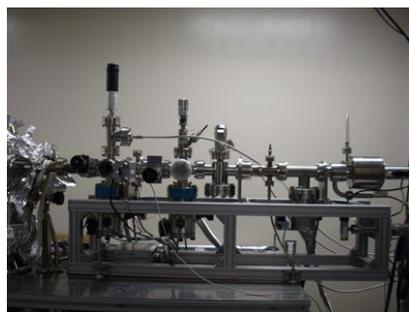


図2 低速原子散乱分光装置

右端にイオン銃がある。そして、左方向に向かい偏向板がある。ここに+50Vの電位をパルスのようにかけられるようになっている。その左横に電氣的に中性な原子ビームを生成する部分がある。さらに左となりには検出器(MCP)がある。このMCP部分にプリアンプがくっつくように設計されている。プリアンプには、800MHzで動作する高速用オペアンプが使用されている。TTLレベルまで信号を増幅した後、飛行時間を計測するtime-to-digital変換器に入力され、その後、パソコンに接続しているインターフェイスボードに信号が伝達されるように構成されている。

5番目に研究において力点を注いだマニピュレータの写真を掲載する。

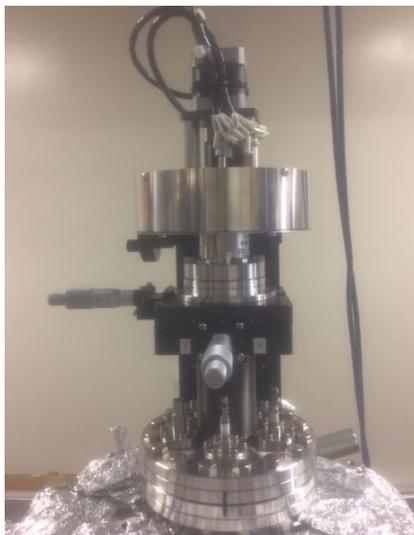


図3 マニピュレータ外観

2つのステッピングモーターにより Polar 角度及び面内回転ができるように設計されている。非常に安定して働くマニピュレータで様々な方向へ試料を回転させながら入射原子ビームをあてるのに十分な作りとなっている。このようにしてできた一連の低速原子散乱分光装置を使い得られた MgO(100) 試料の原子イメージ画像を図4に示す。表面第1～第3原子層の信号を合成して得られたものである。

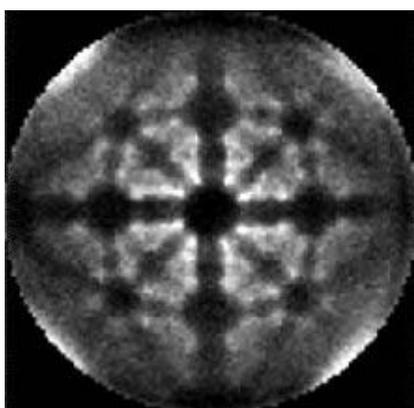


図4 MgO(100)表面 イメージ

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1件)

梅澤憲司

「低速イオン散乱、原子散乱分光による表面

解析」、表面科学、査読有、  
Vol. 38, No. 4, 2017, pp. 158 - 163.

〔学会発表〕(計4件)

(1) 梅澤憲司

“Surface structural analysis of rock salt structure using low energy atom scattering spectroscopy”

Symposium on surface science and nanotechnology -25<sup>th</sup> anniversary of SSSJ Kansai (日本表面科学会) 於：京都市国際交流協会、2017年1月24日

(2) 梅澤憲司

“The system of low energy atom scattering spectroscopy”

第17回イオンビームによる表面、界面解析特別研究会、於：京都府立大学、2016年12月4日

(3) 梅澤憲司

梅澤憲司、塩尻大士、松田晃史、吉本護、小粥啓子

「低速原子散乱分光法による MgO(111)表面構造解析」

応用物理学会、於：東京工業大学、2016年3月19日

(4) 梅澤憲司

“Low energy atom scattering spectroscopy and applications”

第16回イオンビームによる表面、界面特別研究会、於：奈良女子大学、2015年12月5日

〔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：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.las.osakafu-u.ac.jp/umezawa/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

梅澤 憲司 (UMEZAWA, Kenji)  
大阪府立大学 高等教育推進機構・教授  
研究者番号：8 0 2 1 3 4 8 7

(2)研究分担者

なし ( )

研究者番号：

(3)連携研究者

なし ( )

研究者番号：

(4)研究協力者

なし ( )

以上