

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008～2010

課題番号：20244042

研究課題名（和文） 新しい超高速電子回折法の開発

研究課題名（英文） Development of novel ultrafast electron diffraction

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

研究成果の概要（和文）：表面構造解析法である反射高速電子回折法と超高速現象を捉えるストリークカメラとを融合する事で、表面構造の時間変化を観測できる新しい時間分解電子回折法を開発した。開発した手法を用いて、ナノ秒パルスレーザーを照射したときに Si(111)7x7 表面構造が変化する様子を 1  $\mu$ s 時間分解能で観測する事に成功した。

研究成果の概要（英文）：A novel time-resolved electron diffraction has been developed by combining a reflection high-energy electron diffraction (a technique for surface structure) and a streak camera (a method for ultrafast phenomena). Using the developed method, we have successfully observed the structural transition of Si(111)7x7 surface by the irradiation of nano-seconds pulse laser with the temporal resolution of 1 micro-second.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	25,600,000	7,680,000	33,280,000
2009年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2010年度	5,200,000	1,560,000	6,760,000
年度			
年度			
総計	36,400,000	10,920,000	47,320,000

研究分野：表面・界面物理学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：電子回折、超高速現象、表面構造、表面物理

## 1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクスを凌駕する次世代の技術として光機能を融合させたフォトニクスが注目されており、光メモリ、光スイッチなどの実用化が期待されていた。このような光機能をもつ素子の実用化のためには、光照射による材料の応答の理解が必要であり、特に光の照射で誘起させる相転移のダイナミクスを研究する事が重要である。フェムト秒レーザーを用いたポンププローブ技術の発展による光学的な分光測定により、幾つかの物質の光誘起相転移の電子状態の超高速ダイナミクスが明らかになりつつある。原子位置、

すなわち格子のダイナミクスについては、高い時間分解能を持ったX線回折法または電子回折法が開発が行われている。刻々と変化する原子位置が明らかになれば、相転移に絡むポテンシャル形状やメカニズムを理解できると期待されている。当時は、短パルスX線を利用するサブピコ秒のX線回折法やピコ秒パルス電子を用いるピコ秒の電子回折法が開発が行われていた。しかし、一般に短パルスのX線や電子線を発生させるための装置は大掛かりになるという欠点や、単発の測定では時間変化が測定できないために繰り返し現象にしか適用できないという欠点があった。

比較的安価で簡単に構造の時間変化を測定できる回折法で、単発現象も観測できるものが待たれていた。

## 2. 研究の目的

(1) 短パルスプローブを使用せずにサブピコ秒の時間分解能で光学現象を観測する手法としてストリークカメラがある。ストリークカメラでは、時間変化する光信号を光電面で電子に変換し、その電子を掃引電極で高速に振る事でスクリーン上に光信号の時間変化を描く事ができる手法である。スクリーン上に時間軸が投影されるため、単発現象でも時間変化を捉えることができるというメリットがある。本研究では、このストリークカメラの電子管部分が、超高真空環境の電子回折装置に良く整合する事に着目した。つまり電子回折装置に、入射スリット、掃引電極、MCP スクリーンを追加する事で、回折パターンの時間変化をスクリーン上に描く事ができる装置の開発を目指した。

(2) 本研究で開発を目指した新手法では電子銃により発生させた高速電子を試料表面に照射し、正面側に配置したスリット面で回折パターンを観測する。スリット面に水平に設けた直線上のスリットで回折パターンを1次元的に切り出し、後に配置した掃引電極でその電子を上下方向に掃引する。これにより1次元回折パターンの時間変化がスクリーンの上下方向に記録される。さらに本研究者が開発したワイゼンベルグ反射高速電子回折法を使用すると、試料を回転しながら複数の1次元回折パターンの時間変化を測定する事で2次元回折パターンの時間変化を得ることが出来る。本研究では、このような新たな方式による時間分解電子回折法を開発し、表面等の構造の時間変化を捉えられる手法の開発を行う事が目的である。我々は、この新たな手法をストリーク反射高速電子回折法(ストリーク RHEED)と呼んでいる。

## 3. 研究の方法

(1) 本研究で開発した装置の心臓部は、電子を高速に掃引するストリークユニットである。ストリークユニットは、そのサイズや形状が時間分解能等の性能に直結するために、電子軌道シミュレーションソフトウェアを用いて慎重に設計を行った。

(2) 設計に基づきストリークユニットを製作した。また、専用の超高真空槽も設計製作して超高真空排気系を取り付けた。そして超高真空槽内にストリークユニットを装着し配線等を行った。

(3) 掃引電源は市販のストリークカメラ用の物をベースに、本研究で使用するために改造を加えた物を特注した。スクリーンの分解能にもよるがサブピコ秒の時間分解能にも

対応できる基本性能を持っている。掃引タイミングのコントロールは、デジタル遅延発生器を用いて行った。これにより、レーザー照射、ストリーク掃引、ゲート電極、カメラシャッターのコントロールを行った。

(4) 構造変位を誘起するためのレーザーとしてQスイッチ Nd:YAG レーザーを使用した。波長 1064nm で出力エネルギーは 50mJ、パルス幅は $\sim 5$  ナノ秒であった。本研究では、将来的にはサブピコ秒の時間分解能が実現可能な電子回折法の開発を目指すものであるが、予算の制限もありサブピコ秒の分解能はレーザーを除く部分での目標である。本研究では、このナノ秒レーザーを使って装置の調整や開発を進めた。

(5) Si(111)7x7 表面は 830°C 以上で 1x1 構造に相転移することが知られているのでこの相転移をナノ秒レーザーで誘起して、開発した装置で回折パターンの時間変化を観測できる事を確認する。

## 4. 研究成果

(1) ストリークユニットの設計と製作  
本研究では図1の模式図に示すようなストリーク RHEED システムの開発を行った。スリット、掃引電極、MCP スクリーンの部分がス

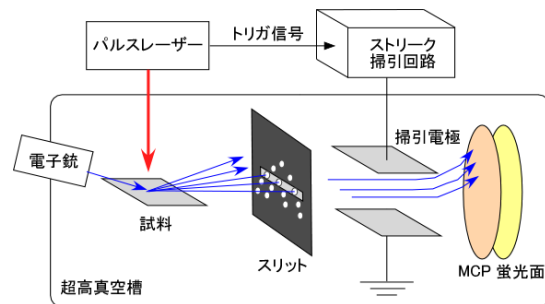


図1 新しい時間分解電子回折法の模式図

トリークユニットである。高い時間分解能を得るためには掃引後の電子ビームをスクリーン上に細く収束させなければならない。本研究では、掃引電極の前に収束・偏向レンズを配置して、それらを電子軌道シミュレーションで最適化した。図2はシミュレーションによる電子軌道の一例である。濃いラインが

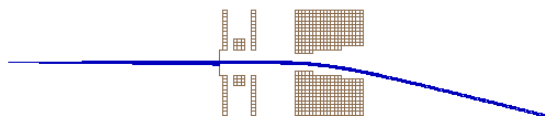


図2 ストリークユニットの電子軌道シミュレーション

電子の軌道であり、大きく曲がったあとでも十分細く絞られていることが分かる。図3に製作したストリークユニットの写真を示す。スリット正面からの写真であり、このスリットの後に収束・偏向レンズ、掃引電極が納め

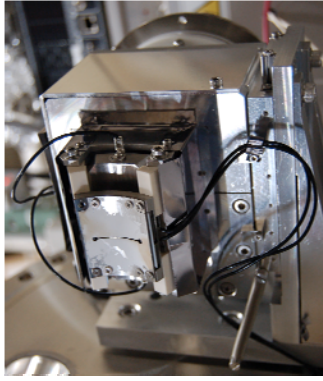


図3 ストリークユニットの写真

られ、ユニットの反対側に有効径3インチのMCPスクリーンが付いている。

(2) 実験真空槽の製作

実験装置を納める超高真空槽も本研究用に設計製作した。超高真空槽に真空ポンプやストリークユニット、電子銃、試料マニピュレータを装着し、図4に示すようなストリーク反射高速電子回折装置を完成させた。完成後に真空排気を行ったが表面の実験を行うの

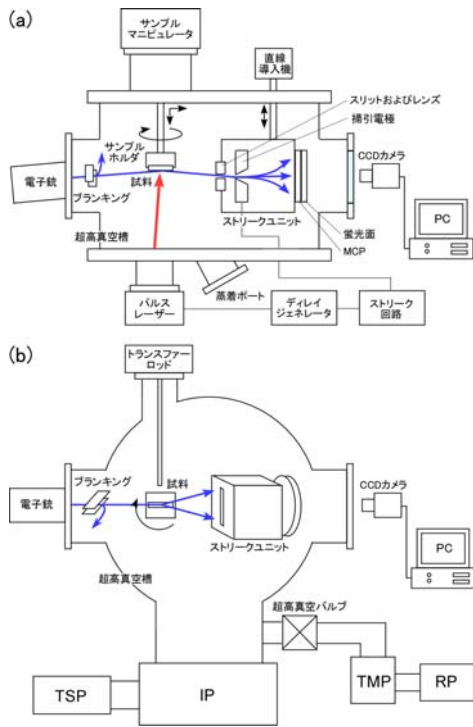


図4 完成したストリーク反射高速電子回折装置の概要

に十分な  $10^{-8}$ Pa 程度の超高真空が達成できた。

(3) 予備実験

電子線を直接スリットに入射して収束・偏向レンズの性能の確認を行ったが、ほぼシミュレーションで設計した通りの結果が得られた。また図5の上の写真はスリット上に写し出された回折パターン。ストリークユニットのスリットを(a)の位置に置いた

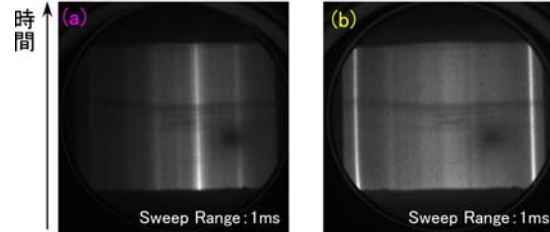
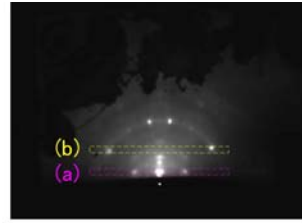


図5 上：スリット面上に写し出された回折パターン. 下：2種類のスリット位置によるストリーク像

ときのスクリーン上のストリーク掃引像が左下の図で、(b)の位置に置いた物が右下の図である。スリットで1次元的に選択した回折パターンが、上下方向に直線的に掃引されており、ストリークユニットが正しく働いている事が確認できる。

(4) 時間分解実験

開発したストリーク RHEED 装置を用いて時間分解電子開発の測定を行った、試料は、Si(111)7x7 表面を用いた。Si(111)清浄表面で観測される 7x7 構造は約 830°C以上で 1x1 構造に相転移する事が知られており、その相転移の観測を行った。本装置の超高真空槽内で Si(111) 基板の加熱清浄化を行い Si(111)7x7 構造を得た。基板温度は相転移温

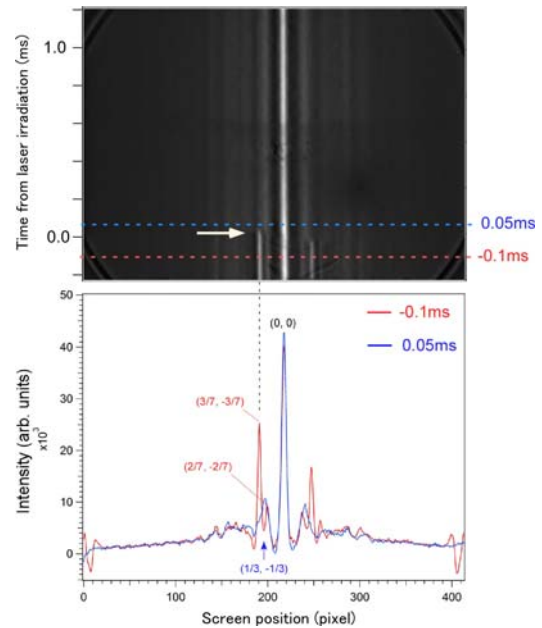


図6 Si(111)7x7 表面の時間分解電子回折パターン

度より低い 800°C に設定し、波長 1064nm の Nd:YAG パルスレーザー (5ns) を入射してスポット強度変化の観測を行った。その結果、レーザーのパワーを 1.1J/cm<sup>2</sup> を程度にすると 7x7 構造に対応するスポットが消失する事を観測した。

図 6 の上に示した像は、掃引レンジ 1.4ms で測定したストリーク像 (回折パターン随時間変化) である。横軸がスクリーンの座標で回折角に対応し、縦軸がレーザー照射からの時間を表している。中央の白いラインが鏡面反射スポットの時間変化であるが、レーザー照射前後で大きな変化が無い事が分かる。一方、鏡面反射スポットの隣にある 7x7 構造に起因する (3/7, -3/7) スポットは、矢印で示したようにレーザー照射でただちに強度が消失している事が観測された。このストリーク像は、新開発のパルス電子線を用いない本研究手法で時間分解電子回折パターンが測定できる事を示しているものであり、本研究目的が達成された事を示す大きな成果である。

図 6 下に示した曲線は、上のストリーク像から切り出したレーザー照射 0.1ms 前の回折強度と 0.05ms 後の回折強度である。照射前にははっきりと観測されていた 7x7 構造に起因するスポットが、照射後には完全に消失している事が分かる。また、7x7 スポットの消失に伴い (1/3, 1/3) の位置に新たなピークが生じている事が分かった。非常に興味深い現象であるので今後詳細に解析を進めたいと考

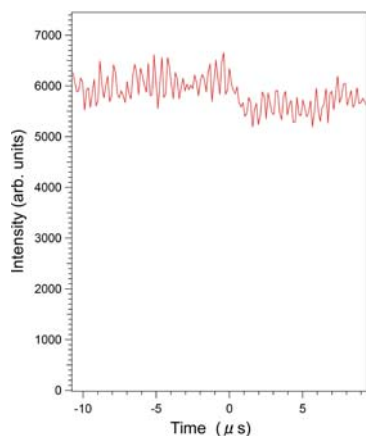


図 7 40 μs のレンジで測定したスポット強度変化

えている。図 7 は同じ (3/7, -3/7) スポット強度の変化を 40 μs のレンジで測定した物である。時間分解能として約 1 μs が得られている。実験真空槽内を漂う浮遊電子等によりバックグラウンドが高くなり、現状ではこれ以上速いスキャンの観測はできないが、浮遊電子等の対処をする事でレーザーのパルス幅である 5ns 程度の分解能は可能である。

(5) 新しい超高速現象用電子回折法の実現に向けて

本研究の目的は、将来にフェムト秒のパルスレーザーを組み合わせることで、超高速現象を観測できるサブピコ秒の分解能をもつ電子回折法を開発する事である。本研究成果は、まさに超高速電子回折法が実現可能であることを実証したことである。したがって、当初の目的を十分に達成できた。今後も、フェムト秒のパルスレーザーの利用を目指して研究を継続して行きたい。

## 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) T. Abukawa, S. Sato, Y. Matsuoka, "Characterization of epitaxial MgO growth on Si(001) surface", Surface Science vol.604, 2010, pp1614-1618. 査読有
- (2) T. Abukawa, D. Fujisaki, N. Takahashi, S. Sato, "Characterization of Fe silicide growth on Si(111) surface by Weissenberg RHEED", e-Journal of Surface Science and Nanotechnology Vol. 7, 2009, pp866-870. 査読有

[学会発表] (計 9 件)

- (1) 佐藤和義、虻川匡司、  
「ストリーク反射高速電子回折法による Si 表面の観測」、  
第 10 回東北大学多元物質科学研究所研究発表会、2010 年 1 2 月 1 日、東北大学
- (2) Tadashi Abukawa (招待講演)  
"Three-dimensional Reciprocal Space Mapping and Kinematical Surface Structural Analysis by Electron Diffraction", 2010 MRS Fall Meeting, 2010/11/29, Boston, USA.
- (3) 佐藤 和義、虻川 匡司、  
「時間分解反射高速電子回折法の開発」、  
第 7 1 回応用物理学会学術講演会、2010 年 9 月 1 6 日、長崎大学
- (4) Katsuyoshi Sato, Tadashi Abukawa,  
"Development of angle-resolved time of flight electron spectrometer using streak camera system", 37th Int. Conf. Vacuum Ultra-Violet and X-ray, 2010/7/15, Vancouver, Canada.
- (5) 虻川匡司 (招待講演)  
「ワイゼンベルグ反射高速電子回折法の開発」日本物理学会第 6 5 回年次大会、2010 年 3 月 2 1 日、岡山大学
- (6) Tadashi Abukawa  
"Three dimensional structural monitor for thin film epitaxial growth", Japan - Korea Asian Core Program General Meeting, 2009.9.25, Sendai.

(7) Tadashi Abukawa (招待講演)  
“Study of MgO buffer layer growth on Si(001) surface”, 7th Japan-Korea Symposium on Surface Nanostructures, 2009.7.14, Sendai.

(8) Y. Matsuoka, T. Abukawa, “Epitaxial MgO Buffer Layer Growth on Si(001) Surface”, 5th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, 2008.11.10, Tokyo.

(9) T. Abukawa, “Development of Spin-Polarized Electron Diffraction for Surface Spin Orientation”, 5th Japan-Korea Symposium on Surface Nanostructures, 2008.9.17, Sendai

[その他]

ホームページで部分的に成果を紹介

<http://surfphys.tagen.tohoku.ac.jp/>

## 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

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者：無し

( )

研究者番号：