

機関番号：12301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20540309

研究課題名（和文） オージェ・損失電子同時計数分光によるフェルミ準位上下電子状態のサイト敏感測定

研究課題名（英文） Site-sensitive measurement of occupied and unoccupied states near the Fermi level by using Auger electron-electron energy loss coincidence spectroscopy

研究代表者

奥沢 誠 (OKUSAWA MAKOTO)

群馬大学・教育学部・教授

研究者番号：50112537

研究成果の概要（和文）：サイトを選択して固体のフェルミ準位近傍上下の電子状態の知見を同時に得る目的で、オージェ・損失電子同時計数分光実験に用いる、調整の容易な同軸型同時計数分光装置を設計・製作した。設計の変更による計画の遅延があったが、基礎データを取得することができた。反射型の電子エネルギー損失分光装置の配置では、設置が容易ではあるが遷移確率が小さいため十分な強度が得られなかったが、設定が容易とはいえないが透過型の配置では有意なデータを取得できる可能性があることが分かった。

研究成果の概要（英文）：For the purpose of obtaining the knowledge of occupied and unoccupied states near Fermi level simultaneously and site-selectively, we have designed and constructed a coaxially symmetric mirror electron energy analyzer which is easy to adjust and is used for Auger electron-electron energy loss coincidence studies in solids. Though the plan was delayed by design changes, we were able to obtain basic data. The reflection mode set-up in the electron energy loss experiment which is easy to install could not bring sufficient signal intensity due to the small transition probability, but the transmission one which is not easy to do so was found to have the probability of obtaining significant data.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	600,000	180,000	780,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：固体電子物性

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：物性実験、表面・界面、強相関電子系、電子分光、コインシデンス分光

1. 研究開始当初の背景

(1) 背景

同時計数法は、原子核実験において開発された手法であるが、近年では原子・分子や表面の実験においても、電子・イオン同時計数法として、主にイオン脱離や吸着の研究に利用されるようになってきた。この計数法は、局在した測定対象からほぼ同時に放出された2種（あるいはそれ以上）の粒子からの情報のみを選択的に取得できる手法であり、2種類のスペクトル（放出粒子数のエネルギー分散）の測定を同時平行に進めることではない。

これに関して若干の説明を付加する。連続して起こる過程〔始状態→中間状態(N_m 個の固有状態の一次結合)→終状態(N_f 個の固有状態の一次結合)]を想定する。簡単のため遷移確率を考慮しなければ通常、1つのスペクトル（ここでは電子エネルギー損失スペクトル）はフェルミ準位近傍上部の電子状態の情報を含んだ N_m 個の中間状態の重ね合わせに、他のスペクトルは（ここではオージェ電子スペクトル）はこの N_m 個の中間状態とフェルミ準位近傍下部の電子状態の情報を含んだ N_f 個の終状態との積の重ね合わせに相当する。

同時計数法では、電子エネルギー分析器を用いて始状態からの遷移エネルギーを固定し注目する中間状態を取り出すことにより、そこから連続的に起こる遷移経路を追跡することができる。逆に終状態を固定しそこへの遷移経路も追跡できる。この特長により、従来の電子・電子同時計数法による固体とその表面の研究は、原子核や原子・分子実験と同様、遷移経路を追跡することを専ら目的としてきた。

(2) 動機

連続して起こる遷移経路を追跡することができるということは見方を変えれば、高エネルギー光物性領域では原子に局在した内殻励起が関与するので、固体においては特定のオンサイトでの測定ができるということである。このようなサイト選択性はNMRなどでも知られているが、NMRなどではバルク中の同種サイトの平均値を与える。一方、本手法においては、検出範囲を励起電子ビーム径程度の領域に限定することが可能である。したがって、本手法はナノスケール領域でのサイト選択性を達成することができる。

この選択性はオージェ・光電子同時計数法においても有効であるが、オージェ・光電子同時計数法はせいぜいフェルミ準位近傍下部の電子状態の知見を引き出せるだけである。本研究で目指したのは、オージェ電子とエネルギー損失電子との同時計数スペクトル測定である。こ

れにより本研究では固体のフェルミ準位近傍上下の電子状態の知見を選択的にオンサイトで且つ同時に得られると期待された。（吸収スペクトルも電子エネルギー損失スペクトルに対応するフェルミ準位近傍上部の電子状態を反映するが、中間状態を指定するのは困難である）これはこれまでにない新手法であった。開発に成功した暁には、本手法がフェルミ準位上下の電子状態の知見を得る新しいナノスケール研究法を拓くものと期待された。

2. 研究の目的

(1) これまでの電子・電子同時計数法の視点（遷移過程探査）とは異なった発想に基づき、新たにオージェ電子・エネルギー損失電子同時計数法を開発し、これにより固体表面付近の任意の原子サイト近傍の局所的な、フェルミ準位上下の電子状態の知見を同時に且つ選択的に得ること。

(2) 上記(1)を達成するため、焦点調整が容易な装置（同軸対称鏡型分析器）を実用化すること。

3. 研究の方法

開発を試みた実験方法を確立するためには、3方向からの焦点を試料上の1点に絞り込むことが必須である。このための分析器として研究当初より現在まで、2個の高感度・高分解能の電子エネルギー分析器が同一焦点をもつ一体型の同軸対称鏡型電子エネルギー分析器が最適であるといえる。これを用い、第3方向から絞られた焦点に照射された電子ビームにより試料から放出される電子のエネルギーを分析することを試みた。

(1) 初年度はオージェ・エネルギー損失電子同時計数実験のための装置の設計、組立及び調整を主に行った。交付された金額が申請額から大きく減額されたため大幅な設計の変更を行い、交付額の枠内で予定していたスペックを維持したまま電子分析器を製作することに主力を置かざるを得なかった。設計の見直し、既存装置との部分的併用、業者との調整等に多大な労力と時間を要する結果となり、本研究の中心的な役割をなす装置の製作は当初計画から大幅に遅れ、二年度の大半をも費やすこととなった。

計画全体に亘って申請者が主要な役割を果たしたが、計画を遂行するに当たっ

て終始大学院生が加わった。また、申請者と共同研究中の高エネルギー加速器研究機構物構研瀬グループからは研究分担者に加わってはいないが、適宜同グループから多大な支援を頂いた。

(2) 三年計画の最終年では前年度に引続き調整を進め、主に、残留磁場除去の徹底及び同時計数測定制御用ソフトウェアの改良を行い、同時計数分光装置を完成させた。その後まず、個々のエネルギー分析装置と同時計数装置全体のスペックを確認するため、それぞれTe/Fe薄膜からの光電子スペクトルと、Sm薄膜のX線励起オージェ・光電子同時計数スペクトルの測定を行った。その後、電子線照射型で遷移金属薄膜のオージェ電子・電子エネルギー損失同時計数スペクトルの測定を試みた。

4. 研究成果

(1) 成果 I

従来の電子・電子同時計数法は遷移過程を探索する目的に専ら用いられてきた。本研究は、固体表面付近の任意の原子サイト近傍の局所的な、フェルミ準位上下の電子状態の知見を同時に且つ選択的に得るという、従来の視点とは異なった発想に基づいており、初年度及び二年度にはオージェ電子・エネルギー損失電子同時計数法を確立するため、焦点調整が容易な装置（同軸対称鏡型電子エネルギー分析器）の試作を試みた。三年計画の最終年では前年度に引続き調整を進め、同時計数分光装置を完成させた。

(2) 成果 II

この装置を用い、この装置のスペックを確認しつつ予備的な測定を行った。予備的な成果を以下に挙げる。

① 個々のエネルギー分析装置のスペックの確認のためTe/Fe薄膜からの光電子スペクトルを測定し、部分的ではあるがTe/Feのデータ取得に用いられ、この結果は研究成果として学会に発表された。内容は、Tb-Fe間の電気的・磁氣的相互作用は界面から2.0nm程度の範囲にまでしか及ばないことを示唆するものである。

② 同時計数装置全体のスペックの確認のため、Sm薄膜のX線励起オージェ・光電子同時計数スペクトルの測定を行い、Sm金属におけるSm3d光電子放出過程の終状態とSm $M_{4,5}N_{4,5}N_{6,7}$ オージェ緩和過程の始状態の間の中間状態の探索を行った。現在予

備的ではあるが、異常と思われる構造が観測されており、確認中である。

初年度に申請時からの大幅な設計の見直しをせざるを得なかったため計画が遅延し、光電子・オージェ電子同時計数に用いる装置の試作には漕ぎ着けたもののオージェ電子・電子エネルギー損失同時計数法を確立するには至っていない。ただ、若干の手直しによって、光電子・オージェ電子同時計数装置からオージェ電子・反射型電子エネルギー損失同時計数装置に変更できるので、遷移金属薄膜のオージェ電子・反射型電子エネルギー損失同時計数スペクトルの測定を試みた。結果は予想通りで、反射型（後方散乱）ではエネルギー損失の遷移確率が低く、十分な散乱強度が得られないこと、散乱角を減少させるにつれ散乱強度が増加することが確認できた。

(3) 今後の展望

オージェ電子・エネルギー損失電子同時計数法を確立するためには、電子エネルギー損失過程の遷移確率が大きくなる位置（透過型の配置）に装置の再配置をしなければならない。この変更には費用と時間が必要であるが不可能ではない。科学研究費補助金による研究期間は終了したが、早急にこの変更を終了し、ここで提案したオージェ・エネルギー損失電子同時計数分光法がナノスケール領域でのフェルミ準位上下の電子状態の知見を同時に選択的に得るために有効であることを示したい。具体的な対象としては、(a) Tb/Fe間の磁氣的相互作用のメカニズム、(b) Sm金属表面の電子状態、(c) Fe/Si(111)界面層における強磁性秩序珪素化層の有無と、磁性イオンの電子状態の深さ依存性との相関、等を予定している。

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)

[学会発表] (計1件)

① 芹澤嘉彦、小山田健、飯島千尋、奥沢 誠、Tb/Fe及びSm/Feにおける、RE 3dXPS スペクトルの膜厚依存性、日本物理学会2010年秋季大会、2011.9.25、大阪府立大学（大阪府）

[その他]

(1) ホームページ等(研究成果データベース)

https://univ-db.media.gunma-u.ac.jp/public/main.php?gakubu=11000&gakka=11040&kouza=&q=okusawa&btnS=%E6%A4%9C%E7%B4%A2&pid=res_search_list

(2) アウトリーチ活動情報(含報道関連情報)

①

<http://www.edu.gunma-u.ac.jp/~okusawa/welcome.html>

②

<http://www.edu.gunma-u.ac.jp/~okusawa/science.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

奥沢 誠 (OKUSAWA MAKOTO)

群馬大学・教育学部・教授

研究者番号：50112537