

機関番号：24403

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20560023

研究課題名(和文) 新規開発・低速原子散乱による絶縁体表面三次元構造マッピング装置

研究課題名(英文) Low energy atom scattering spectroscopy for insulator surface atomic structure analysis

研究代表者 梅澤 憲司 (KENJI UMEZAWA)

大阪府立大学・総合教育研究機構・理学系研究科 教授

研究者番号：80213487

研究成果の概要(和文)：電氣的に中性な希ガスビームが、分析プローブとなっている。入射エネルギーは、3 keV 以下であり、100kHz にパルス化している。このパルス化された原子ビームを絶縁体表面に照射し後方散乱された粒子を MCP で検出した。実際には飛行時間を計測することで表面元素の同定が行える仕組みとなっている。試料を面内回転及び極軸回転することで絶縁体表面第1原子層から第3原子層までの情報が得られる。空間分解能は、0.1Å 以下である。この装置に係る計測制御系を全設計自作し、マッピングができるようにした。

研究成果の概要(英文)：We have been developing a low energy atom scattering system combined with a time-of-flight spectrometer for insulator surface structural analysis. Insulator surface structure is difficult to study because of charging effects during electron or ion beam bombardment. Structural analyses of insulator surfaces are very important in fundamental research as well as technology fields. In our system, charged ion beams of 2 keV-He⁺/Ne⁺ are converted into neutral beams by charge exchange with the same element gas after the primary beam passes through a chopper. Other features of this system are pulsed beams, time-of-flight measurements, and a microchannel plate (MCP) detector is coaxially mounted along the primary beam. This is a home made equipment. Surface atomic structure can be “seen”.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・薄膜表面界面物性、

キーワード：原子散乱、表面構造解析

1. 研究開始当初の背景

国際的に新機能材料に関する基礎研究や応用研究が激化する中、固体表面において未開拓な研究領域は、絶縁体表面構造解析である。

21世紀初頭の現在においても中々研究は進展していない。本研究の目的は、新しく開発した低速原子散乱分光装置(空間分解能 0.1Å)により磁場中におかれた絶縁体である強誘電体表面

構造を原子レベルで解析することにある。この装置は、申請時において6年の歳月を費やしていた。この装置が円滑に働くように整備することも目的に入っている。

具体的には電子回路の見直し及び超高真空装置の整備であった。今回は電荷を持たない低速原子散乱分光装置を開発することになった。低速とは3 keV以下のエネルギー領域を意味し入射粒子と標的粒子の相互作用で形成されるシャドーコーン半径が2~4Å程度であり最隣接原子間距離とほぼ同等である。空間分解能は0.1Å以下である。また、表面第3層より深く進入し散乱される粒子は計測できない特徴がある。したがって表面第1~3層の原子構造を測定するのに非常に適しておりnc-AFMでは観察できない表面原子構造を知ることができる特徴がある。本装置ではスペクトルを得るにあたり飛行時間計測法を採用した。今後、表面科学の発展においてこの装置はきわめて有用であると考えている。

2. 研究の目的

目的は、自作した“新しい低速原子散乱装置（絶縁体表面構造解析装置）”のリアルタイム計測化による表面原子マッピングである。これは飛行時間型の装置で現在1結晶軸に対するスキャン計測を行うのに3時間程度要するが、30分程度に短縮し高速化をはかる。同時に計測時間分解能を5倍高めて2 nsecとし例えばYSZ試料のようにYとZrの隣どおしの元素でも信号区別がつくように改良する。また中性ビーム（原子ビーム）の生成効率をできるだけ高めることを目標とする。

3. 研究の方法

装置は市販されていないため自作を行った。具体的には、イオン銃、イオン電源、ディフレクター、プリアンプ、アンプ、Time-to-digital converter(TDC)、パルスジェネレータ、計測用ソフト、ステッピングモータドライバー等である。本装置は、原子ビーム、すなわち電荷をもたない

電気的に中性なビームを入射プローブとしている。原子ビームを生成方法は次の通りである。いったん、イオンビームを生成しディフレクターでパルス化する。その後、気体による電荷交換反応を用いて中性化を行った。実験的に得られた中性化効率はエネルギーや核種に依存するが30~40%程度であった。これは計算的に得られた値とほぼ同等となった。ビームラインは3台のターボ分子ポンプによる差動排気を適用し超高真空チェンバーの真空が 10^{-8} Pa領域を保てるようにしてある。超高真空チェンバーは排気容量が約300 L/secのイオンポンプ2台およびサブリーションポンプを利用している。検出器は中心部に直径5mmの穴が開いたMCPを使用し入射ビームに対して180°後方散乱の位置に設置した。MCPは試料から散乱された信号を増幅する役割をする。パルスビーム生成における繰り返し周波数は50 kHzであり、TDCの時間分解能は10 nsecである。また自作パルスジェネレータの立ち上がり時間は15V/2nsecである。

4. 研究成果

自作した装置の概要について説明を行う。フィラメント型のイオン銃にて希ガスをイオン化して取り出した。次に自作したパルス発信器に印加電圧として+50Vの電位をかけた。PCから

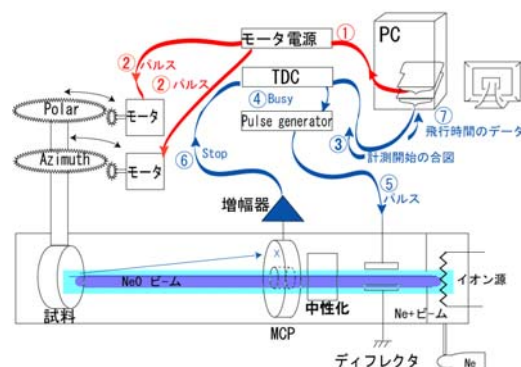


図1 低速原子散乱装置概略

パルス発信器へ信号を送りディフレクターへの印加電圧をパルス信号とした。このディフレクター部分を通過する希ガスイオンビームは、この位置においてパルス化される。繰り返し周波数は、50 - 100 kHzとした。その後、パルス化された荷電粒子は、中性化室にて電荷交換反応により電気的に中性なビームとなる。しかしながら、電荷交換生成率は、約40%であることから約60%は、イオンビームの状態で残留することになる。そこで、さらに下流である超高真空チェンバーに近い箇所に、別のディフレクターを設置し、約+50Vの印加電圧を加えることで残留イオ

ンビームを除去した。この効果により、電氣的に中性な原子ビームのみが、絶縁体試料表面に照射されることとなった。次に試料により散乱されたビームは、入射ビーム方向に対して180度後方に設置したマイクロチャンネルプレートにより検出された。その後、プリアンプにより約40倍に信号を増幅し、さらにアンプにより10倍に信号を増幅した。増幅した信号は、time-to-digital converter (TDC)へ入力される。このTDCも自作である。4chの独立した入力ポートをもっており時間分解能は、10 nsecである。本装置の場合、計測は、飛行時間を測定することで行われており、通常 μ secの時間オーダとなる。即ち、10 nsecの時間分解能は、測定において十分な値を示している。

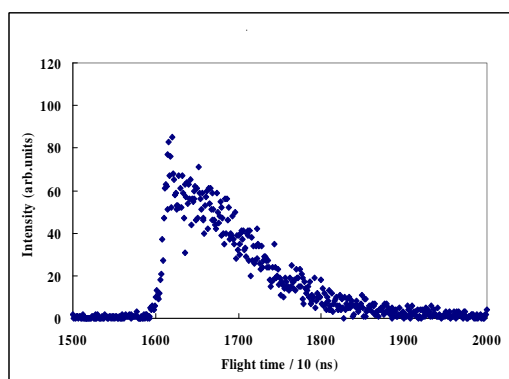


図2 MgO(100)から得られた飛行時間スペクトル

この装置を用いて金属単結晶表面におけるエピタキシャル成長過程の観察を行った。表面合金、バイメタルと呼ばれる系で触媒を促進する表面構造を低速イオンビーム散乱法により研究した。特にPd/Ni(111)ではPd蒸着時のNi基板温度によりPd(111)[11 $\bar{2}$]/Ni(111)[11 $\bar{2}$]とPd(111)[$\bar{1}\bar{1}2$]/Ni(111)[11 $\bar{2}$]の割合が周期的に変化することを発見した。またPd/Pt(111)表面構造についても観察を行った。同じ金属表面に係る研究でもPd/Ni(111)は、格子不整合が12%と大きい系に対して、Pd/Pt(111)は、格子不整合が1%程度と極めて小さい系をしめしている。いずれの場合も室温では合金を形成しない系であるが、表面合金が形成されていることを確認した。これは、蒸着したPd原子が下地金属の中に埋もれた状態を構成し、両者の原子間距離が0.3Åであることからわかった。これらの実験により、本装置は、金属表面でも利用できることが確認できた。

ここで話を絶縁体表面計測へ戻す。本研究の目的は、絶縁体表面原子構造について調べることができる装置を開発することにある。一般にイオンビームは荷電粒子であるために電荷をもっている。故に、絶縁体表面で電荷が蓄積すると反発しあい計測することができなくなる。そこで重要となるのが、中性化効率の向上である。この点を工夫するために

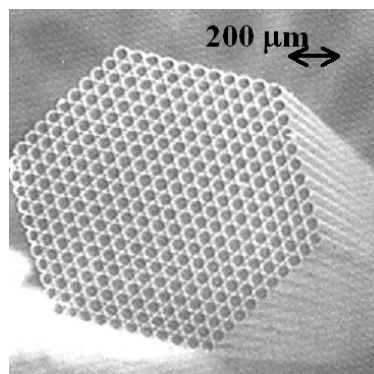


図3 ガラスキャピラリー断面

図3に示すガラスキャピラリーの内壁にイオンビームを当てることによるオージェ効果を利用してイオンビームを中性ビームへ返還する試みを行った。中性化効率は、99%が期待できるからである。しかしながら、キャピラリー内壁の荒さが問題となり、必ずしも期待通りの結果をえることはできなかった。

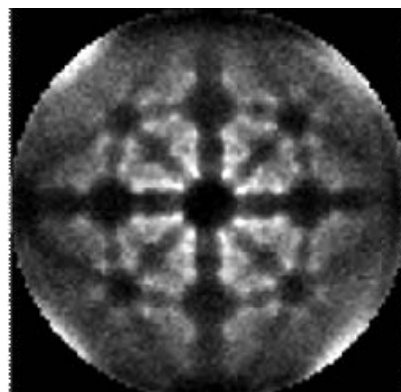


図4 MgO(100)試料から得られた表面原子イメージ

最終的に得られた表面原子イメージを図4に示す。これは、MgO(100)試料から得られたものである。結晶軸方位も示していることがわかる。電氣的に中性な原子ビームを試料上で偏向することはできないので、試料の入射角度を連続的に変化させ、各ポイントにおいて得られた飛行時間スペクトルの積算強度

より画像化したものである。この画像は、表面第 1~3 層までの原子を反映したものである。実際には 3 次元におけるマッピングを示しているとも考えられる。このデータもよくみると中心部において縦軸方向の結晶軸を示す暗部の幅が、中心部の原子をはさみ、上下でズレを生じていることがわかる。これは、試料を回転する際におけるマニピュレータの動きの荒さに起因するものと考えられる。

以上より、研究課題をほぼ達成することができた。図 4 は、恐らく世界的に見ても最初の原子イメージ像であろうと考える。絶縁体表面原子を観察することは困難を要するが故に、同様の報告がないのである。

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 5 件)

(1) 梅澤憲司、"ガラスキャピラリーを使った X 線収束、イオンビーム収束に関する研究:ロシア、米国、日本の歴史と現状について", X 線分析の進歩 第 40 集、2009 年、pp. 45-50. アグネス技術センタ、査読有、

(2) K. Umezawa, E. Narihiro, Y. Ohira, M. Yohimura, "TOF-ICISS and STM study on 3ML-Pd/Pt(111) surface structure: Does the lattice mismatch determine the epitaxial growth?", Nucl. Instrum. Meth. B, vol. 266 (2008) pp. 1903-1907. 査読有

(3) K. Umezawa, "Low energy ion and atom scattering spectroscopy for surface structural analysis of single crystals and insulators", Nucl. Instrum. Meth. B, vol. 266 (2008) pp. 1892-1896. 査読有

(4) T. Fukuda, K. Iwamoto, Y. Fujimoto, K. Umezawa, H. Nakayama, "Mixed layer formation of copper overlayers on Ni(110)", Appl. Surf. Sci. vol.254 (2008) pp.7693-7696. 査読有、

(5) T. Fukuda, H. Nakayama, K. Umezawa, "Surface structural analysis of Cu/Ni(110)", Phys. Rev. B 78 (2008) 195422. 査読有、

[学会発表] (計 3 件)

(1) 発表者: 梅澤憲司
発表タイトル: MgO(111) 表面原子構造に関する研究
学会名: 第 58 回応用物理学会関係連合講演会
発表年月: 2011 年 3 月 24 日

発表場所: 神奈川工科大学

(2) 発表者: 梅澤憲司
発表タイトル: Pd/Ni(111) 初期成長過程
学会名: 第 57 回応用物理学関係連合会
発表年月: 2010 年 3 月 17 日
発表場所: 東海大学、神奈川県

(3) 発表者: 梅澤憲司
発表タイトル: "Detection system for low energy atom scattering spectroscopy"
学会名: 4th Vacuum and surface sciences conference of Asia and Australia
発表年月: 2008 年 10 月 28 日
発表場所: 島根県松江市

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: タイミングパルス発生装置
発明者: 梅澤憲司、中西繁光
権利者: 大阪府立大学
種類: 特許
番号: 特願 2009-265382
出願年月日: 2009 年 11 月 20 日
国内外の別: 日本国内

○取得状況 (計 1 件)

名称: タイミングパルス発生装置
発明者: 梅澤憲司、中西繁光
権利者: 大阪府立大学
種類: 実用新案
番号: 実用新案登録第 3147975 号
取得年月日: 2009 年 1 月 7 日
国内外の別: 日本国

[その他]

ホームページ等

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

<http://www.b.s.osakafu-u.ac.jp/~mkato>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

梅澤 憲司 (KENJI UMEZAWA)
大阪府立大学・総合教育研究機構・理学系研究科 教授

研究者番号: 8 0 2 1 3 4 8 7

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし

()

研究者番号: