

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 27 日現在

機関番号：87202

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560034

研究課題名(和文) 軟エックス線を用いた絶縁材料の欠陥の研究

研究課題名(英文) Study of defect in insulator material by using soft x-ray

研究代表者

小林 英一 (KOBAYASHI, EIICHI)

公益財団法人佐賀県地域産業支援センター九州シンクロトロン光研究センター・ビームライングループ・主任研究員

研究者番号：80319376

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円、(間接経費) 1,260,000円

研究成果の概要(和文)：軟X線吸収分光法を用いて、酸化マグネシウムの欠陥について研究した。アルゴンスパッタにより欠陥を生成した酸化マグネシウム薄膜のO K吸収端の軟X線吸収スペクトルは、表面にアモルファス層が形成されるためスパッタ前よりもブロードになることがわかった。また、粉末試料のスペクトルのピーク強度が水素雰囲気中の加熱温度で変化した。これは水素還元により酸素欠陥が生成し、その欠陥の量は温度に依存することを示している。次に酸化マグネシウムに電圧を印加させながら軟X線吸収スペクトルを測定し、絶縁破壊が起こる付近の電圧でスペクトルが変化することがわかった。

研究成果の概要(英文)：Defect of Magnesium oxide (MgO) was studied by using near-edge X-ray absorption fine structure (NEXAFS). NEXAFS spectra for the O K-edge region of MgO thin film created defects by argon ion sputtering were broader than that of before sputtering because the amorphous layer is formed on the surface. The intensities of peaks in the NEXAFS spectra of MgO powder were changed by annealing in hydrogen atmosphere. These results indicate that the oxygen vacancies were induced by hydrogen reduction and the number of vacancies was dependent on the treatment temperature. NEXAFS spectra were measured while applying a voltage to the MgO and changed with near the breakdown voltage.

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：軟X線吸収分光 絶縁体 欠陥

1. 研究開始当初の背景

絶縁材料の表面の分析は主にプローブとして電子やイオンが用いられるためチャージアップの問題で困難であった。また、従来の材料をより高機能化するには、材料が動作中の状態を観察することが必要である。そのような観察には、プローブとして光を用いた手法が有効である。そこで、材料の電子状態をその場観察できる全蛍光収量法による軟X線吸収スペクトル測定装置を構築し、絶縁材料の分析を始めた。

2. 研究の目的

本研究の最終的な目標は、軟X線領域の全蛍光収量法を用いて絶縁材料の絶縁破壊のメカニズムを解明することである。対象とした絶縁材料は、酸化マグネシウムである。酸化マグネシウムは可視光の透過性が高い、電気的絶縁性が高いなどの特徴を持ち、二次電子を放出しやすい材料であるため、プラズマディスプレイパネルの電極保護層として用いられている。酸化膜の絶縁破壊の原因の一つとして、酸素欠陥がある。酸素欠陥が存在するとバンドギャップ内に欠陥準位が生じるため、膜の特性に大きく影響がでる。そこで最初に膜に酸素欠陥が生成したことで電子状態がどのように変化するか明らかにすることを目的とした。また、欠陥の種類によりどのような違いがあるか明らかにする。さらに、それらの知見をもとに酸化マグネシウムに電圧を印加しながら軟X線吸収スペクトルを測定し、どのように絶縁破壊が起こるか解明する。

3. 研究の方法

チャージアップの問題がない試料の軟X線吸収スペクトルは試料のドレイン電流を測定する全電子収量法を絶縁試料及びその場観察には蛍光法を用いた。蛍光はマイクロチャンネルプレート等を用いて検出した。測定はSAGA-LSのBL12, UVSORのBL2A, PFのBL11Aで行った。

試料の酸素欠陥は真空中や水素雰囲気中で加熱、或いはアルゴンイオンを照射して生成した。

4. 研究成果

アルゴンスパッタした薄膜

酸化マグネシウム薄膜は加熱処理した後、欠陥を生成するためにアルゴンスパッタした。その薄膜の0 K吸収端の軟X線吸収スペクトルで3つの強いピークが観測された。これらのピークはアルゴンスパッタ直後からブロードになり、スパッタ時間が増すとさらにブロードになった。また、Mg 1s 光電子スペクトルの半値幅はスパッタの初期まで増加し、その後ほぼ一定の値になった。これらの結果から、スパッタの初期において、薄膜表面に非晶質層が形成されていることがわかった。また、Mg 1s 光電子スペクトルの強度に対する0 1s 光電子スペクトルの強度はスパッタ時間と共に減少した後、ほぼ一定の値となった。このことから、スパッタの初期において、酸素欠陥が生成されやすいことがわかった。

水素雰囲気中で加熱処理した微粒子

酸素欠陥を生成するために水素雰囲気中で加熱処理した酸化マグネシウム粉末の0 K吸収端の軟X線吸収スペクトルを測定した。その結果、スペクトルの低エネルギー側に理論計算したスペクトルにはない二つのピークが観測された。これらのピークは酸化マグネシウムのバルクを起源とするスペクトルにおいて観測されないことから、表面の吸着種に由来するものであると考えられる。また、スペクトルの形状は加熱温度が高くなるほどブロードになった。これまでの研究において欠陥が生成するとスペクトルがブロードになることから、水素還元処理により表面に欠陥が生成され、温度が高くなるとその欠陥の量が増加していると考えられる。試料は水素還元処理した後、大気に曝しているため、

観測されたピークは酸素欠陥に吸着した大気中の分子であると考えられる。

電圧印加中の酸化マグネシウム

酸化マグネシウムに電圧を印加させながら全蛍光収量法で0 K吸収端の軟X線吸収スペクトルを測定した。その結果、S/N比がまだ十分ではないが、絶縁破壊が起こる電圧付近でスペクトルの変化が観測された。これは酸化マグネシウムの酸素の結合状態が変化したためと考えられる。このように軟X線吸収分光法を用いて絶縁破壊過程を捉えることができた。

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4件)

E. Kobayashi, K. K. Bando and T. Okajima, Near-edge X-ray absorption fine structure spectroscopic study of the annealed metal oxide thin film, UVSOR Activity Report 2013, 査読無, UVSOR-41, 2014, in press.

Eiichi Kobayashi and Toshihiro Okajima, Investigation of annealed magnesium oxide powder using near-edge X-ray absorption fine structure and X-ray photoelectron spectroscopies, Proceedings of 9th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '13, 査読無, 2013, 530-531.

E. Kobayashi, K. K. Bando and T. Okajima, UVSOR Activity Report 2012, 査読無, UVSOR-40, 2013, 94.

小林英一, 岡島敏浩, 放射光軟X線を用いた軽元素の化学結合状態解析, まてりあ, 査読有, Vol. 50, 2011, pp. 423-430.

[学会発表](計9件)

小林英一, 阪東恭子, 岡島敏浩, 水素還元処理した酸化マグネシウム微粒子表面の変化, 日本物理学会第69回年次大会, 2014年3月28日, 東海大学湘南キャンパス

小林英一, 岡島敏浩, 真空中で加熱した酸化マグネシウム薄膜の研究, 第27回日本放射光学会年会, 2014年1月11日, 広島国際会議場

Eiichi Kobayashi and Toshihiro Okajima, Investigation of the annealed magnesium oxide powder using near-edge X-ray absorption fine structure and X-ray photoelectron spectroscopies, 9th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '13, December 5, 2013, Sheraton Kona, The Big Island, Hawaii

小林英一, 岡島敏浩, 加熱処理による酸化マグネシウム微粒子表面の変化, 第54回真空に関する連合講演会, 2013年11月26日, つくば国際会議場

Eiichi Kobayashi and Toshihiro Okajima, Near-edge X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy and X-ray Photoelectron Spectroscopy Study of The Annealed Magnesium Oxide Thin Film, 12th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, November 7, 2013, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba

小林英一, 岡島敏浩, 軟X線吸収分光法と光電子分光法を用いた酸化マグネシウム微粒子の研究, 日本物理学会2013年秋季大会, 2013年9月27日, 徳

島大学常三島キャンパス

小林英一，岡島敏浩，軟X線吸収分光法を用いた加熱処理した酸化マグネシウムの研究，第16回XAFS討論会，2013年9月6日，東京大学理学部化学本館講堂

小林英一，岡島敏浩，イオンスパッタリングによる酸化マグネシウム薄膜表面の変化に関する研究，日本物理学会第68回年次大会，2013年3月26日，広島大学

小林英一，岡島敏浩，軟X線吸収分光法と光電子分光法による酸化マグネシウム薄膜表面の研究，第53回真空に関する連合講演会，2012年11月15日，甲南大学ポートアイランドキャンパス

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小林 英一 (KOBAYASHI, Eiichi)
(公財) 佐賀県地域産業支援センター九州
シンクロトロン光研究センター・主任研究員

研究者番号：80319376