

機関番号：84502

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011

課題番号：23656038

研究課題名（和文） X線熱散漫散乱による表面フォノン分散の検出

研究課題名（英文） Surface phonon dispersion studied by X-ray thermal diffuse scattering

研究代表者

田尻 寛男（TAJIRI HIROO）

財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員

研究者番号：70360831

研究成果の概要（和文）：結晶内の原子は整然と格子を組んで配列しているが、熱的に振動している（格子振動）。結晶の表面やナノメートル尺度の非常に薄い膜（超薄膜）では、格子振動の様子は結晶内部のそれとは異なっている。その様子を調べるために、格子振動によるX線の散乱を計測する実験手法と、その解析手法を開発した。厚さ 10 ナノメートル以下のビスマス超薄膜をシリコン基板上に作製し、超薄膜の格子振動由来の X 線散乱の計測に成功した。

研究成果の概要（英文）：The atoms in crystals are arranged with regularity, making lattices, and they are thermally vibrating (lattice dynamics). The lattice dynamics of crystal surfaces and ultra-thin films are different from that in crystals. We developed the methodology to detect elastically scattered X-rays from lattice vibrations of surface and ultra-thin films. We prepared bismuth ultra-thin films with thickness less than 10 nm on silicon substrates, and succeeded in observing diffuse X-ray scattering from phonons of ultra-thin films.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	1,500,000	450,000	1,950,000

研究分野：X線表面結晶学

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：表面フォノン、X線散乱、ビスマス超薄膜、シリコン単結晶

1. 研究開始当初の背景

（1）表面フォノン（表面格子振動）の分散関係は、表面物性を論じる上で重要な基本物性である。しかし、高分解能電子エネルギー損失分光法やヘリウム原子線散乱分光法など限られた計測手法により検出するしかなかった。

（2）一方、高分解能電子エネルギー損失分光法では低振動数（1 THz 以下）フォノンの測定はほぼ不可能であり、ヘリウム原子線散乱分光法でも非常に厳しい測定条件となる。

（3）そこで、高分解能電子エネルギー損失分光法、ヘリウム原子線散乱分光法に替わる新しい表面フォノン分散測定法としてX線熱散漫散乱法を結晶表面に応用することを提

案する。フォノンからの散乱である X 線熱散漫散乱は、逆格子空間でブラッグ反射点のまわりに拡がって観測され、その強度分布からフォノン分散を実験的に求めることができる。しかも、散乱強度はフォノン振動数の自乗に反比例するため、低振動数のフォノン分散決定に特に有効である。

2. 研究の目的

（1）電子エネルギー損失分光法やヘリウム原子線散乱法に替わる結晶表面におけるフォノン分散を検出する新手法として、X 線のフォノンによる散乱を利用した測定手法を開発する。すでに我々が開発した透過表面 X 線回折法に X 線熱散漫散乱法を組み合わせることで、これを実現する。

(2) フォノンがかかわる表面物理現象、特に表面・薄膜相転移について科学的理解を深めるための基盤実験技術を整備する。

(3) 低振動数 (1 THz 以下) のフォノン分散決定に特に有効である点を生かし、表面強弾性体や表面強誘電体等の表面新物質を探索するための基盤技術として発展させる。界面構造にも敏感である特性を生かし、界面に局在したフォノン分散の決定についての展開も視野に入れる。

3. 研究の方法

(1) 結晶表面・超薄膜からの X 線熱散漫散乱の測定を行うための放射光測定システムを大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL13XU に立ち上げる。ビームライン BL13XU は、“その場”表面・界面構造解析が行える国内唯一の共用ビームラインであり、かつ、同解析のためのビームラインとしては国内最大強度のアンジュレータ光源をもつ。

(2) ナノメートル厚さの薄膜からの X 線熱散漫散乱の計測を行う。現状の X 線光源 (第三代放射光光源) で十分測定可能な X 線熱散漫散乱強度を得るために、散乱断面積の大きな重元素を吸着した表面である Bi 吸着 Si(111) を測定表面とする。Si(111)-7×7 清浄表面では、室温蒸着で数十原子層にわたってビスマスがエピタキシャル成長することが知られており (長尾ら、*Jpn. J. Appl. Phys.*, **39**, 4567 (2000))、ビスマスの膜厚を順次減らしてゆき数原子層からの X 線熱散漫散乱が観測できるか検証するモデルシステムとして非常に良い性質を持っている。いくつかの膜厚のビスマスエピタキシャル膜を作製し、X 線熱散漫散乱測定を試みてビスマス薄膜のフォノン分散を決定するのに十分な精度の測定データを取得する。

(3) X 線熱散漫散乱データから表面・薄膜フォノンの分散情報を引き出すための解析プログラムを自作する。ブラッグ反射点や超格子反射点のまわりに広がる X 線熱散漫散乱パターンを最小自乗法によりフィッティングし、Born von Karman モデル (F. Herman, *J. Phys. Chem. Solids* **8**, 405 (1959)) に基づいた結晶格子に関するダイナミカル・マトリクスを解くことでフォノン分散関係を得ることができる。

(4) 項目 (2) で得られた実験結果を、項目 (3) で構築した X 線熱散漫散乱解析プログラムにより解析し、表面・超薄膜のフォノン分散関係を実験的に決定する。

4. 研究成果

(1) これまで我々が開発してきた透過表面 X 線回折法 (田尻ら、*日本放射光学会誌* **22**, 131 (2009)) を基に、表面および超薄膜からの X 線フォノン散乱 (熱散漫散乱) を測定するための測定システムを、大型放射光施設 SPring-8 の表面・界面 X 線構造解析ビームライン BL13XU にて構築した (図 1 参照)。X 線フォノン散乱の測定には一光子計測の可能な二次元検出器 (PILATUS) および X 線プリズムレンズによる集光ビームを用いた (学会発表①参照)。

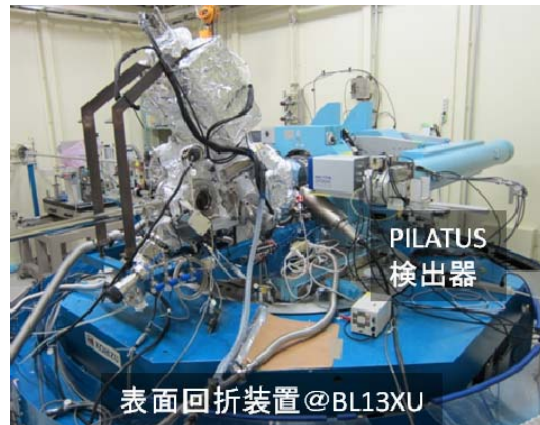


図 1: 透過 X 線回折が計測可能な表面回折装置、プリズム集光レンズ、二次元検出器からなる放射光 X 線熱散漫散乱計測システム

(2) 項目 (1) で構築した計測システムをもちいて、ビスマス超薄膜 (Bi(001)超薄膜) を清浄な Si(111) 面上にその場作製し、放射光 X 線反射率計測を行った。反射率の振動からビスマス超薄膜の厚さは 9.6 ナノメートルである、と見積もられた (図 2 参照)。

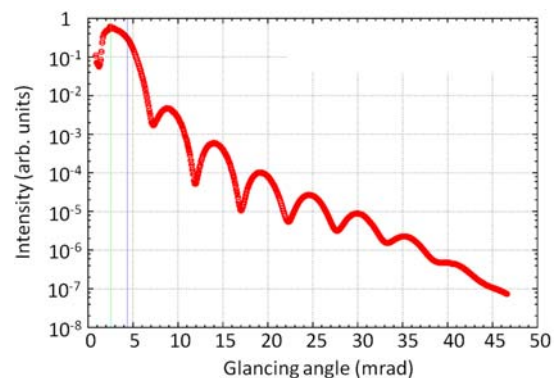


図 2: X 線熱散漫散乱計測システムでシリコン基板上にその場作製したビスマス超薄膜の放射光 X 線反射率プロファイル

(3) C++言語と数値計算パッケージ LAPACK を用いて、結晶からの X 線散漫散乱をシミュレーションするプログラムを開発した。Born von Karman モデルに基づく結晶格子に関するダイナミカル・マトリクスの固有値・固有ベクトルを解くルーチン、これより得られたフォノン分散関係から X 線散漫散乱を計算するルーチン、X 線散漫散乱の強度プロファイルを計測システムに即して計算するルーチンからなる。

(4) 項目 (1) で構築した計測システムをもちいてビスマス超薄膜の結晶構造と膜厚との関係を放射光 X 線でその場観察した。Si(111)-7×7 上に室温でエピタキシャル成長したビスマスの膜厚が、6 原子層を超えるあたりから薄膜の相変化が見られた (図 3 a) の Bi{012}相から b)の Bi(001)相への変化)。さらに、ビスマス超薄膜とシリコン基板 (Si(111)) との界面に 7×7 超構造が保存されていることを観測した。Bi/Si(111)界面の 7×7 超構造の存在は今まで報告がなく、本研究で初めて明らかとなった。膜厚が 10 ナノメートル近くの厚さになってもこの界面 7×7 超構造は保たれており、なおかつ、試料を大気にさらしても丸二日以上、X 線回折・散乱プロファイルに変化が見られなかった。したがって、この 7×7 超構造は大気中でも安定であることがわかった。



図 3 : a)膜厚 4 原子層程度のビスマス超薄膜からの放射光透過 X 線回折パターンと b)膜厚 6 原子層以上のビスマス超薄膜からの放射光透過 X 線回折パターン

(5) 項目 (2) の膜厚 9.6 ナノメートルのビスマス超薄膜からの X 線フォノン散乱を項目 (1) の計測システムをもちいて観測することができた (図 4 参照)。厚さ 10 ナノメートル程度の超薄膜のフォノン分散はこれまで全く報告がないと言ってよい。本研究で、厚さ 9.6 ナノメートルのビスマス超薄膜の X 線フォノン散乱が観測できたことにより、既存の分光手法とは異なる光の散乱現象を利

用した新しい測定原理に基づくフォノン分散の測定方法が超薄膜に有効であることが示された。

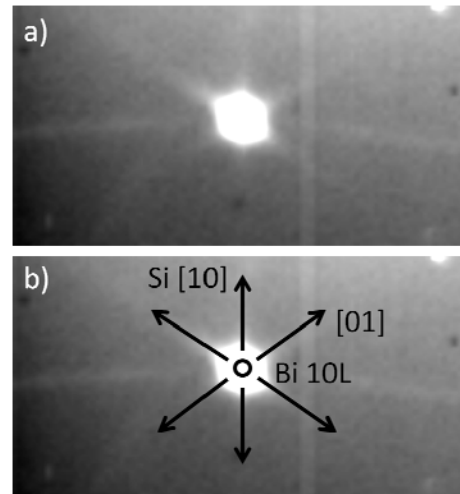


図 4 : a)ビスマス超薄膜からの X 線熱散漫散乱パターンと b)X 線熱散漫散乱の拡がる方向を示す矢印を a)に書き加えた図

(6) 項目 (5) の結果は、今後ビーム輝度を二桁増大させることができれば、本手法で単原子膜や結晶表面のフォノン散乱の計測も可能になることを示しており、まさに二桁のビーム輝度増大を目指す SPring-8II という次世代光源の到来によって、本手法が、表面フォノン由来の表面相転移等の研究に大いに真価を発揮する手法として発展していくことが期待される。

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 0 件)

[学会発表] (計 1 件)

- ① 田尻寛男、「プリズム型集光レンズを利用した表面 X 線回折」、日本放射光学会、2012 年 1 月 9 日、鳥栖市民文化会館 (佐賀県)

[その他]

ホームページ等

<http://sss.spring8.or.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田尻 寛男 (TAJIRI HIROO)

財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員

研究者番号 : 70360831

(2)研究分担者
なし (None)

研究者番号 :

(3)連携研究者
なし (None)

研究者番号 :