KEK Proceedings 2007-15 February 2008 M



ナノテクノロジー総合支援プロジェクトワークショップ

# LEEM/PEEM を用いた表面研究の新しい展開

## **Progresses in low energy electron microscopy** and photoemission electron microscopy studies (LEEM & PEEM)

平成17年10月12日(水)、13日(木)

高エネルギー加速器研究機構

越川孝範、安江常夫、小林啓介、木下豊彦、小野寛太



High Energy Accelerator Research Organization

## High Energy Accelerator Research Organization (KEK), 2008

KEK Reports are available from:

High Energy Accelerator Research Organization (KEK) 1-1 Oho, Tsukuba-shi Ibaraki-ken, 305-0801 JAPAN

 Phone:
 +81-29-864-5124

 Fax:
 +81-29-864-4602

 E-mail:
 irdpub@mail.kek.jp

 Internet:
 http://www.kek.jp

プログラム1							
(佐頼講演) 放射光光電子顕微鏡に上スナノイメージング・ナノ分光法 尾嶋正治(東大丁) 3							
NiO(100)~ $\pm$ Bar and the second definition of the second definition o							
NO(100)衣面における父姐做性做区下メインの加熱効果の観察 利井地明(東人物性研)							
(依頼講) LEEM 用人ビン偏極電子源の開発 中四							
(特別講演) スビン SEM の最近の進展 小池和幸(北海道大)							
光電子顕微鏡(PEEM)を用いた鉄隕石(FeNi)の局所構造解析と磁区構造解析							
小嗣真人(広大放射光)							
(講義) 光電子顕微鏡による超高速現象の観察 小野寛太(KEK)							
放射光光電子顕微鏡による強相関酸化物薄膜の磁区観測 組頭広志(東大工)10							
光電子顕微鏡を用いた界面ナノ構造のイメージング 谷内敏之(東大)11							
(依頼講演) ナノスケール磁性体のスピンダイナミクス 木村 崇(東大物性研)12							
試料電界強度を制御した PEEM による絶縁物観察への展開 吉川英樹(物材機構)13							
多極子 Wien filter EXPEEM の開発と表面触媒反応 朝倉清高(北大触媒セ)							
LEEM/PEEMにおける検出器による分解能劣化 清水 宏(アルバック・ファイ株式会社)15							
(依頼講演) Au-Si 合金島の原子ステップへの配列 日比野浩樹(NTT 物性科学基礎研)16							
LEEM in-situ observation of the growth of implant source grown Ga nanodots on SiO2							
R.Buckmaster1(東北大金研)17							
ペンタセン薄膜成長過程の LEEM および STM による微視的解析 藤川安仁(東北大金研)18							
In/Cu(001)および Sn/Cu(001)表面における相転移の LEEM 観察 八田振一郎(京大)							
Pb/W(110)成長過程における LEEM のステップコントラスト反転 安江常夫(大阪電通大)20							
ポスターセッション							
LEEM、制限視野 LEED および化学分析 SR-XPEEM を用いた In/Si(111)上の Sb の成長過程の動的観察							
中口明彦(大阪電通大)							
LEEM および制限視野 LEED による W(110)上の Cu 二重層構造変化 中口明彦(大阪電通大)22							
PEEM・LEEMによるグラファイト基板上のペンタセン薄膜成長 塩野入正和(千葉大工)23							
Availability of PEEM to detect electric field of p+n-Si(100) substrates H.Fukidome (豊田工大)24							
Cu/W(110)における UV-PEEM コントラストメカニズム 安江常夫(大阪電通大)25							
UV-PEEM による反強磁性ドメインの直接観察 郭方准(JASRI)							
HiSOR における低温光電子顕微鏡(LT-PEEM)の開発 小嗣真人(広大放射光)27							
放射光 SPELEEM を用いた In/Si(111)の高分解能化学効果の観察 清水 宏(大阪電通大)28							
PF 研究会報告 20							

目 次

10月12日(水)

- 13:00 13:40 【依頼講演】「放射光光電子顕微鏡によるナノイメージング・ナノ分光法」 尾嶋正治(東大工)
- 13:40 14:00 「NiO(100)へき開表面における反強磁性磁区ドメインの詳細観察」 奥田太一<sup>1</sup>、孫海林<sup>1</sup>、宮田洋明<sup>2</sup>、清水宏<sup>3,\*</sup>、中口明彦<sup>3</sup>、 越川孝範<sup>3</sup>、郭方准<sup>4</sup>、松下智裕<sup>4</sup>、為則雄祐<sup>4</sup>、室隆桂之<sup>4</sup>、 小林啓介<sup>4</sup>、<u>木下豊彦<sup>1,4</sup></u>(<sup>1</sup>東大物性研、<sup>2</sup>東レ、<sup>3</sup>大阪電通大、<sup>4</sup>JASRI、<sup>\*</sup>現 ア <sup>ル<sup>\*</sup>ック・ファイ</sup>(株))
- 14:00 14:20
   「NiO(100)表面における反強磁性磁区ドメインの加熱効果の観察」

   新井邦明<sup>1</sup>、蔵圭司<sup>1</sup>、前田勇樹<sup>1</sup>、奥田太一<sup>1</sup>、柿崎明人<sup>1</sup>、

   孫海林<sup>1</sup>、宮田洋明<sup>2</sup>、郭方准<sup>3</sup>、脇田高徳<sup>3</sup>、小林啓介<sup>3</sup>、

   木下豊彦<sup>1,3</sup> (<sup>1</sup>東大物性研、<sup>2</sup>東レ、<sup>3</sup>JASRI)
- 14:20-15:00 【依頼講演】「LEEM 用スピン偏極電子源の開発」 中西 彊(名大理)
- 15:00 15:20 休憩
- 15:20 16:10 【特別講演】「スピン SEM の最近の進展」 小池和幸(北海道大)
- 16:10 16:30 「光電子顕微鏡 (PEEM)を用いた鉄隕石 (FeNi)の局所構造解析と磁区構造解析」 <u>小嗣真人</u><sup>1</sup>、脇田高徳<sup>2</sup>、谷内敏之<sup>3</sup>、小野寛太<sup>4</sup>、鈴木基寛<sup>2</sup>、 河村直己<sup>2</sup>、高垣昌史<sup>2</sup>、谷口雅樹<sup>5</sup>、小林啓介<sup>2</sup>、石松直樹<sup>5</sup>、 圓山裕<sup>5</sup>(<sup>1</sup>広大放射光、<sup>2</sup>JASRI、<sup>3</sup>東大工、<sup>4</sup>高エ研、<sup>5</sup>広大)

16:30 - 18:30 ポスターセッション

- 1. 「LEEM、制限視野 LEED および化学分析 SR-XPEEM を用いた In/Si(111)上の Sb の成長過 程の動的観察」
  - <u>中口明彦</u><sup>1</sup>、郭方准<sup>2</sup>、橋本道廣<sup>1</sup>、上田将人<sup>1</sup>、安江常夫<sup>1</sup>、木下豊彦<sup>2</sup>、 小林啓介<sup>2</sup>、越川孝範<sup>1</sup>(<sup>1</sup>大阪電通大、<sup>2</sup>JASRI)
- 2.「LEEM および制限視野 LEED による W(110)上の Cu 二重層構造変化」

中口明彦<sup>1</sup>、清水宏<sup>1,\*</sup>、高橋宏彰<sup>1</sup>、E.Bauer<sup>2</sup>、安江常夫<sup>1</sup>、越川孝範<sup>1</sup>

- 3.「PEEM・LEEM によるグラファイト基板上のペンタセン薄膜成長」
  - <u>塩野入正和</u>、小笹桃子、富山直之、解良聡、奥平幸司、上野信雄 (千葉大工)
- 4.  $\lceil$  Availability of PEEM to detect electric field of  $p^+n$ -Si(100) substrates  $\rfloor$ 
  - <u>H.Fukidome</u>, M.Yoshimura and K.Ueda(豊田工大)
- 5. 「Cu/W(110)における UV-PEEM コントラストメカニズム」

<u>安江常夫<sup>1</sup>、清水宏<sup>1,\*</sup>、中口明彦<sup>1</sup>、高橋宏彰<sup>1</sup>、E.Bauer<sup>2</sup>、越川孝範<sup>1</sup></u>

(<sup>1</sup>大阪電通大、<sup>2</sup>アリゾナ州立大、<sup>\*</sup>現 アルバック・ファイ(株))

6.「UV-PEEM による反強磁性ドメインの直接観察」

<u>郭方准</u><sup>1</sup>、孫海林<sup>2</sup>、奥田太一<sup>2</sup>、小林啓介<sup>1</sup>、木下豊彦<sup>1</sup>( $^{1}$ JASRI、<sup>2</sup>東大物性研)

7.「HiSOR における低温光電子顕微鏡(LT-PEEM)の開発」

小嗣真人<sup>1</sup>、朝直俊介<sup>2</sup>、木村昭夫<sup>2</sup>、澤田正博<sup>1</sup>、生天目博文<sup>1</sup>、

谷口雅樹<sup>2</sup>(<sup>1</sup>広大放射光、<sup>2</sup>広大)

- 8.「放射光 SPELEEM を用いた In/Si(111)の高分解能化学効果の観察」
  - <u>清水宏<sup>1,\*</sup>、中口明彦<sup>1</sup>、郭方准<sup>2</sup>、脇田高徳<sup>2</sup>、安江常夫<sup>1</sup>、小林啓介<sup>2</sup>、E.Bauer<sup>3</sup>、 越川孝範<sup>1</sup>(<sup>1</sup>大阪電通大、<sup>2</sup>JASRI、<sup>3</sup>アリゾナ州立大、<sup>\*</sup>現アルバック・ファイ(株))</u>

18:30 - 20:00 懇

懇親会

#### 10月13日(木)

9:00 - 9:35 【講義】「光電子顕微鏡による超高速現象の観察」

小野寛太(KEK)

- 9:35 9:55 「放射光光電子顕微鏡による強相関酸化物薄膜の磁区観測」 <u>組頭広志<sup>1</sup></u>、谷内敏之<sup>1</sup>、脇田高徳<sup>2</sup>、横谷尚睦<sup>3</sup>、久保田正人<sup>4</sup>、小野寛太<sup>4</sup>、 尾嶋正治<sup>1</sup>、Mikk Lippmaa<sup>5</sup>、川崎雅司<sup>6</sup>、鯉沼秀臣<sup>7</sup>(<sup>1</sup>東大工、<sup>2</sup>JASRI、<sup>3</sup>岡 山大理、<sup>4</sup>高エ研、<sup>5</sup>東大物性研、<sup>6</sup>東北大金研、<sup>7</sup>物材機構)
- 9:55 10:15 「光電子顕微鏡を用いた界面ナノ構造のイメージング」
   <u>谷内敏之</u><sup>1</sup>、脇田高徳<sup>2</sup>、鈴木基寛<sup>2</sup>、河村直巳<sup>2</sup>、高垣昌史<sup>2</sup>、 佐藤平道<sup>3</sup>、若山貴行<sup>3</sup>、小林啓介<sup>2</sup>、尾嶋正治<sup>1</sup>、秋永広幸<sup>3</sup>、 小野寛太<sup>4</sup> (<sup>1</sup>東大、<sup>2</sup>JASRI、<sup>3</sup>産総研、<sup>4</sup>KEK-PF)
- 10:15 10:35 休憩
- 10:35 11:10 【依頼講演】「ナノスケール磁性体のスピンダイナミクス」 木村 崇、大谷義近(東大物性研)
- 11:10 11:30 「試料電界強度を制御した PEEM による絶縁物観察への展開」 <u>吉川英樹</u><sup>1</sup>、安福秀幸<sup>1</sup>、木村昌弘<sup>1</sup>、田村圭司<sup>2</sup>、志水隆一<sup>2</sup> (<sup>1</sup>物材機構、<sup>2</sup>大工大)
- 11:30 11:50
   「多極子 Wien filter EXPEEM の開発と表面触媒反応」

   朝倉清高、新美大伸、宮本剛志(北大触媒セ)
- 11:50 12:10
   「LEEM/PEEM における検出器による分解能劣化」

   <u>清水宏<sup>1.\*</sup></u>、安江常夫<sup>1</sup>、越川孝範<sup>1</sup>(<sup>1</sup>大阪電通大、<sup>\*</sup>現 アルヘ<sup>\*</sup>ック・ファイ(株))
- 12:10 13:10 昼食
- 13:10 13:45
   【依頼講演】「Au-Si 合金島の原子ステップへの配列」

   日比野浩樹<sup>1</sup>、渡辺義夫<sup>2</sup> (<sup>1</sup>NTT物性科学基礎研、<sup>2</sup>NTT-AT)
- 13:45 14:05 「LEEM in-situ observation of the growth of implant source grown Ga nanodots on SiO<sub>2</sub>」 R.Buckmaster<sup>1</sup>, F.-Z.Guo<sup>2</sup>, K.Kobayashi<sup>2</sup> and T.Yao<sup>1</sup> (<sup>1</sup>東北大金研、<sup>2</sup>JASRI)
- 14:05 14:25 「ペンタセン薄膜成長過程の LEEM および STM による微視的解析」
  - 藤川安仁、J.T.Sadowski、櫻井利夫(東北大金研)
- 14:25 14:45 「In/Cu(001)および Sn/Cu(001)表面における相転移の LEEM 観察」 八田振一郎<sup>1</sup>、郭方准<sup>2</sup>、奥山弘<sup>1</sup>、有賀哲也<sup>1</sup>(<sup>1</sup>京大、<sup>2</sup>JASRI)
- 14:45 15:05 「Pb/W(110)成長過程における LEEM のステップコントラスト反転」
- <u>安江常夫</u><sup>1</sup>、天川良太<sup>1</sup>、清水宏<sup>1,\*</sup>、中ロ明彦<sup>1</sup>、高橋宏彰<sup>1</sup>、E.Bauer<sup>2</sup>、越川 孝範<sup>1</sup>(<sup>1</sup>大阪電通大、<sup>2</sup>アリゾナ州立大、<sup>\*</sup>現 アルバック・ファイ(株))

#### 放射光光電子顕微鏡によるナノイメージング・ナノ分光法

東京大学大学院工学系研究科 尾嶋正治

ナノテクノロジーの進歩に伴い、ナノ領域だから発現する機能や物性を用いたデバイ スの開発が急ピッチで進められている。我々は10年以上前に数10nmサイズの半導体 量子ドットの電子状態を解析する目的で、Schwarzschild objectives で約100nmに集束さ せた放射光を用いる走査型光電子顕微鏡(SES200光電子アナライザー付)を開発し、量子 ナノ構造解析を試みた。PEEMには1)空間分解能、2)エネルギー分解能、3)時間 分解能の3要素が重要であるが、このプロジェクトではエネルギー分解能はまずまずで あったが軸合わせの困難さや測定時間に問題があり、実用的PEEMとはならなかった。

そこで、Pt上CO酸化反応解析などに威力を発揮し、さらに急速な進歩を遂げている 投影型PEEMに着目し、PEEMSPECTORを使ったmobile PEEMを共同開発した。空間分 解能は 50nm以下が得られ、また実時間モニターも可能である。このシステムによって、 1)円偏光や直線偏光放射光を用いたMCD,MLD磁化イメージング(パーマロイ、NiO 単結晶、La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub>強相関系薄膜、鉄隕石など)、2)磁気ナノ構造による磁化カイラ リティ制御素子の開発とその実証、3)LSI用ゲート絶縁膜中相分離の解析、などを行 っている。

一方、デバイス中のナノ構造がどのような物性を示すかを解明するには埋もれた状態 での磁気状態、化学状態、電子状態を明らかにする必要がある。そこで、硬 X 線を用 いた埋め込みナノ構造のイメージングを試み、200nm 以下の領域に埋め込まれた Au ナ ノ構造を明瞭に観測することに成功している。現在、埋め込み磁気ナノ構造の解析につ いて検討を進めている。

これらナノイメージングとともに、微小領域における spectroscopy は今後の展開が大 いに期待される分野であり、高いエネルギー分解能でのナノ領域光電子分光、およびナ ノ領域の XAFS 解析 (ナノ XAFS) が注目されている。ただし、上記3要素全てにおい て高い分解能を実現することは極めて困難であるため、その技術が最も威力を発揮する 試料やサイエンスを注意深く選択することが重要であろう。今後の展開としては、不均 一触媒表面反応の解析、特殊ナノ構造中磁化反転ダイナミクスの解析、ナノバイオ試料 の観察、LSI チャンネル領域の動的解析など新しい研究分野が目白押しで、高輝度放射 光の重要性がますます高まるものと思われる。

本研究は KEK-PF 小野助教授、東大工組頭講師、谷内君、広島大小嗣講師、JASRI 木 下氏、脇田氏たちと行ったものである。また、科研費基盤研究(S)「放射光光電子顕微 鏡によるナノ分光法の開発」の支援で研究を進めている。

## NiO(100)へき開表面における反強磁性磁区ドメインの詳細観察

東大物性研<sup>1</sup>、東レ<sup>2</sup>、大阪電通大<sup>3</sup>、JASRI<sup>4</sup>

奥田太一1、孫海林1、宮田洋明2、清水宏3、中口明彦3、越川孝範3、郭方准4、松下智裕4 、為則雄祐4、室隆桂之4、小林啓介4、木下豊彦1、4

われわれはこれまでに、放射光の偏光特性を光電子顕微鏡 PEEM と組み合わせ、磁区観察 を行ってきた[1]。最近では、磁気線2色性(Magnetic Linear Dichroism; MLD)を利用した 反強磁性体の磁区観察も行っている。最近、反強磁性体 NiO の磁区観察を行い、その表面 上に磁性体薄膜をのせた際の磁区構造の変化から、NiのL吸収端のMLDを用いて観察し た際には、TFドメインと SFドメインが、酸素の K 吸収端の線2色性(LD)を用いた際には TFドメインのみの情報を得ていることを示した。ここで、TFドメインとは、NiOの反強磁 性相互作用により結晶歪がおこり、そのために Twin が生じることで現れる反強磁性磁区ド メインのことであり、NiOの場合には4本の<111>方向に沿って結晶がひずむことで 現れる。一方、Sドメインは、各(111)面内の3種類の容易磁化方向、<112>にスピ ンがそろうことで現れる。すなわち合計12種類の反強磁性磁区ドメインが存在すること になる。

われわれは、今回 SPring-8 に導入された SPELEEM 装置を BL27SU に持ち込み、直線偏 光を用いてこれらのドメインの詳細な観察ができることを明らかにした。

図にNi $L_2$ 級終端のMLDを用いたT & Sドメインのイメージと、OK吸収端のLDを用いたTドメインのイメージを示す。TFドメインでは、この実験配置の場合で3種類のコントラス トが現れており、計算で予想される結果と一致している。一方、Sドメインでははるかに多 くのコントラストが存在し、細かいSドメインの構造が見えていることがわかる。これほど までにT&Sドメインを区別して細かく報告した例はこれまでにないと思われる。



Ni  $L_2$  edgeで観察した T & S ドメイン 0 K edgeで観察した T ドメイン



[1] T. Kinoshita et al., J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 2932.

### NiO(100)表面における反強磁性磁区ドメインの加熱効果の観察

東大物性研<sup>1</sup>、東レ<sup>2</sup>、JASRI<sup>3</sup>

新井邦明<sup>1</sup>、蔵圭司<sup>1</sup>、前田勇樹<sup>1</sup>、奥田太一<sup>1</sup>、柿崎明人<sup>1</sup>、孫海林<sup>1</sup>、宮田洋明<sup>2</sup>、郭方准<sup>3</sup>、 脇田高徳<sup>3</sup>、小林啓介<sup>3</sup>、木下豊彦<sup>1、3</sup>

近年、磁気抵抗効果を利用した磁気記録媒体の基板として反強磁性体の磁区構造に興味が集まっている。強磁性体同様、ネール温度前後の温度変化に伴い、相転移が起こる はずであるが、その反強磁性磁区構造が可逆的に変化をするのか、非可逆的なのかを調 べることは重要な問題である。以前、光電子顕微鏡(PEEM)と放射光を用いた磁区観察 の結果からは[1]、磁区構造が可逆的な変化を示し、結晶を作成したときの歪を反映し た磁区を示すとされていた。われわれは、SPring-8に導入された PEEM を使うことで、 詳細な磁区ドメイン観察が可能になったので[2]、今回その加熱前後における磁区構造 を調べてみた。

実験は、BL25SU&27SU の PEEM 装置を用いた。ネール温度(約530K) 以上にア ニールをし、その加熱前後での磁区ドメインの変化の観察を行った。Niの L<sub>2</sub>吸収端、 OK吸収端に相当する直線偏光軟 X 線による磁気二色性を用いて、磁区構造観察を行った。 た。

下の図は、アニール前と後の、OK吸収端での磁区ドメインである。図のように、ア ニール後のOK吸収端でTドメインが変化することが確認できた。また、それに伴い、 NiのL<sub>2</sub>吸収端での磁区ドメインでは、Sドメインの変化が見られた。これは以前の報 告[1]と異なる結果であり、研究会では、これらの詳細な実験結果を発表する。





アニール前の OK吸収端での アニール後の OK吸収端での
 磁区ドメイン 磁区ドメイン
 [1] F.U.Hillebrecht et al., Phys. Rev. Lett. 86 (2001)3419.
 [2] 奥田太一ほか、本研究会講演。

## LEEM 用スピン偏極電子源の開発

### 名古屋大学・大学院理学研究科 中西 彊

スピン偏極電子ビームは、1970年代後半に高エネルギー加速器分野で実用化され、 電磁的相互作用と弱い相互作用を統一的に理解する標準理論の確立に重要な貢献をし た。このとき使われたのが、円偏光レーザーで GaAs 結晶を照射し偏極電子を生成す るいわゆる GaAs 型偏極電子源であり、円偏光の極性変換により電子ビームのヘリシ ティ変換が可能、量子効率が高い等の利点がある一方偏極度は約 30%であった。

この偏極電子源はその後 GaAs 結晶に替わる歪み GaAs 薄膜や超格子薄膜によって 偏極度の改善が図られ、現在では GaAs-GaAsP 歪み超格子薄膜によって 90%の偏極 度、0.5%の量子効率が実現されている。

また、素粒子最前線を探るために建設計画が進んでいる 1TeV クラスの電子・陽電 子リニアコライダーが求めるナノ秒幅の高密度マルチバンチビームの生成における障 害となる表面電荷制限現象の解明と克服するための処方も見つかっている。

このように高性能化された高エネルギー加速器用偏極電子源の技術を"電子顕微鏡 の偏極電子ビーム化に応用できないか"というのがここで取り上げたいテーマである。 この具体的動きが、越川孝範氏(大阪電気通信大学)から持ち込まれた「Spin-LEEM の高性能化によりナノサイズ磁区構造の実時間観察を可能にしよう」という課題であ ったが、幸いにしてこの課題は今年度のJST-要素技術開発項目に採用されたばかり である。

私の研究室メンバーは電子顕微鏡の要求するビーム技術については全くの素人であ り、今後まず試作機を設計・製作する作業のなかで徐々にノウハウを習得してゆきた いと考えている。本研究会では LEEM の要求する偏極電子ビームを生成する上で予 想される問題点をこれまでの経験知識により整理してみたいと思う。

### スピン SEM の最近の進展

#### 北大 小池和幸

磁性試料に電子を照射すると、試料内部にあって磁化の要因となっている電子が、そのス ピン状態を保ったまま2次電子として放出される。したがって、走査電子顕微鏡とスピン 検出器を組み合わせ、放出された2次電子のスピン状態をスピン検出器で検出して画像化 すると、試料の磁区像を得ることができる。この装置は1984年に小池等によって初めて開 発され<sup>1)</sup>、スピン偏極走査電子顕微鏡(スピンSEM)と名づけられた。磁区観察装置とし ては様々なものが知られているが、これらの装置と比べてスピンSEMは、表面感度が高

い、磁化方向の直接検出ができる、 表面の凹凸が大きい試料や厚い試 料でもそのまま観察できる、高分 解能である等優れた特徴を有する。 本装置は最初の開発以来、報告者 等の継続的な研究・開発によって、 その性能は大きく向上し、最新装 置では分解能 5 nm、観察温度 40 ~400Kが実現されている。

図1はスピンSEMで得られた、 層状ペロブスカイト構造を有する Mn<sub>1.36</sub>Sr<sub>1.64</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub>の(a)トポ像、(b) ~(h)磁区像である<sup>2)</sup>。磁区像より、 この物質は45~80 Kで層面法線方 向に弱い磁気異方性を有する強磁 性体、80 Kで相転移(メタ磁性) をおこし、80~110 Kで層状反強磁 性となり、そのネール温度は110 K であることがわかる。

本講演では、これらを含め、ス ピン SEM で得られた最近の結果 を報告する。





- 1) K. Koike and K. Hayakawa: Jpn. J. Appl. Phys. 23, L187(1984).
- M. Konoto, T. Kohashi, K. Koike, T. Arima, Y. Kaneko, T. Kimura, and Y. Tokura, Phys. Rev. B 71, 184441(2005).



<110>

## 光電子顕微鏡による超高速現象の観察

高エネルギー加速器研究機構

### 小野寛太

放射光を用いた光電子顕微鏡では、励起光のエネルギーを変えることで元素 選択的イメージングが出来ること、偏光を用いることにより磁気イメージング が可能であることなど、通常の励起光を用いる場合に比べてさまざまな利点が あるため、盛んに研究が行われている。本研究会でも、PEEM を用いたほとん どの研究で放射光が利用されているであろう。

近年、放射光の持つ特徴であるパルス性を利用した光電子顕微鏡による超高 速現象の時分割測定が行われ始めている。また、さらなる時間分解能を目指し フェムト秒レーザと光電子顕微鏡を用いた時分割測定も行われ始めている。こ れらの時分割観察においては、ポンプ・プローブ法が用いられており、規則正 しく繰り返す系の観察に限られてはいるものの、ナノ磁性体の磁化ダイナミク スの観察などでは大きな成果を集めている。しかしながら、国内ではこのよう な研究を進めようとする動きはあるものの研究成果が出ていないのが現状であ る。

そこで、本講演では始まったばかりの研究分野である、光電子顕微鏡による 超高速現象の観察について、これまでの研究例および現状での最先端の研究に ついて紹介する。また、この手法の限界がどこにあるのか、またX線自由電子 レーザやERLなどの次世代光源が完成した暁にはどのような研究展開が考えら れるのかということについても議論したい。



					La <sub>1-x</sub> S	r <sub>x</sub> MnO <sub>3</sub> LSMO
				PEEM		
	LSMO $x = 0.2, 0.4$	[100]	[100]		6rTiO <sub>3</sub> (001)	
MBE		SPring-8	BL25SU	$\operatorname{Mn} L_3$	642 eV	
1	LSMO x	= 0.2				160 K T <sub>c</sub> =287
K	1(a)		[100]			C C
						200 nm
	10				1(b)	
		LSMO	2 3µm		180°	
					SrTiO <sub>3</sub>	



160K

## 光電子顕微鏡を用いた界面ナノ構造のイメージング

1 東大院工、2JASRI、3 産総研、4KEK-PF

○谷内敏之1、脇田高徳2、鈴木基寛2、河村直巳2、高垣昌史2、佐藤平道3、

若山貴行3、小林啓介2、尾嶋正治1、秋永広幸3、小野寛太4

1 はじめに 光電子顕微鏡 (PEEM) は主に真空紫外・軟X線領域での顕微分光法として用 いられている。われわれは PEEM を硬X線領域で用いることにより、薄膜の界面などに埋 め込まれた微細な構造の観察・分光が可能であると考えた。今回は硬X線 PEEM による埋 もれた界面ナノ構造の可視化を目的として、薄膜中に埋め込んだ界面微細構造の観察を試 みた。さらに異なる深さのキャップ層で埋め込まれた試料の X 線吸収スペクトルから、硬 X線 PEEM のプローブ深さについて見積もった。

**2 実験方法** 図 1(a) のように試料は Si 基板上にリソグラフィーにより Au の微細構造を作 製した後、Co 薄膜でキャップすることで Au の微細構造を埋め込んだ。Co キャップ層の膜 厚がそれぞれ 50 nm, 100 nm, 200 nm の3種類の試料を作製した。測定は SPring-8 BL39XU に設置した光電子顕微鏡 (Elmitec, PEEMSPECTOR) を用いて行った。

3 結果と考察 図 1(b)に Au の微細構造を 50 nm の Co キャップ層で埋め込んだ試料の PEEM 像を示す。測定は Au L 吸収端近傍の X 線を用いて行った。図の明るい部分は埋め 込まれた Au の微細構造である。50 nm のキャップ層で埋め込まれていても、界面の Au の 微細構造を明瞭に観察することが出来た。さらに、Au 吸収端の上下で得られた像の差分を とることにより、Au に由来するコントラストのみを抽出することが出来る。また 100 nm, 200 nm の厚いキャップ層で埋め込んだ試料においても同様に Au の微細構造を明瞭に観察 することに成功した。以上の結果から、硬X線領域で PEEM を用いることにより、埋め込 まれた界面微細構造の元素選択的なイメージおよびX線吸収スペクトルを得られることが 分かった。講演では硬X線 PEEM のプローブ深さとメカニズムについても議論する。



図1 光電子顕微鏡を用いて観察したCo薄膜(50 nm)下の埋 め込みAu微細構造。(a)模式図と(b)光電子像。Coキャップ 層は50 nm。光子エネルギーはAu La吸収端(11.97 ke)。

## ナノスケール磁性体のスピンダイナミクス

東京大学物性研究所 木村崇、大谷義近

ナノスケールで形状制御された磁性体では、静磁エネルギーが支配的になり、交換エネ ルギーとの競合から、単磁区構造や磁壁を一つだけ内包するニ磁区状態など、磁区構造は 比較的単純になる。直径がサブミクロンスケールの磁気円盤では、Fig.1 のような磁気渦構 造が安定する。磁気渦における渦中心の吹き出し磁化は、占有体積が非常に小さく、高い 保磁力を有する。また、外部に漏れ磁場を発生させないことから、基礎物理学的な観点か らでなく応用的観点からも興味深い。本講演では、磁気円盤の静的、及び動的磁化特性に ついて、我々の研究室での結果を中心に紹介する。

磁気円盤は、吹き出し磁化の分極とスピン分布の周り方のカイラリティにより分類され る。磁気間力顕微鏡は吹き出し磁化などを比較的簡便に測定することができるため、良く 知られた磁化解析手段であるが、ローレンツ顕微鏡も、カイラリティを明瞭に判別できる など、有効な磁化解析手段である。また、ローレンツ顕微鏡では、外部磁場を加えること も容易であり、比較的高速に現象を観察ができることから、動的磁化過程の観測が期待さ れる。Fig.2 に、実際にローレンツ顕微鏡を用いて観察した時計回り(CW)と反時計周りの (CCW)に対応した電子像を示す。講演では、これらの外部磁場下での観測結果についても 紹介する。また、最近、我々は、スピン注入を用いた磁気カイラリティの決定法について も提案、実証したので、それについても紹介する。

次に、電流による磁気渦構造の制御について紹介する。通常、磁区構造は、外部磁場を 用いて制御されるが、近年、スピントランスファー効果に起因した電流による磁区構造制 御が注目されている。我々は、スピントランスファー効果が磁気渦にどのように影響する かを、電流磁気効果を用いて詳細に調べた。その結果、磁気渦は、電流に比例して変位し、 電流により磁気渦を消滅させることが可能であることが分かった。現時点では、磁区構造 は、磁気抵抗効果からの推測であるため、直接観察による磁化構造の解析が期待される。

最後に、磁気円盤の動的磁化特性について述べる。磁気渦は磁気ソリトンの一種であり、 エネルギー損失が非常に少ない情報伝達が期待される。熱励起に起因した無磁場中でのス ピン波の発生、変調磁場による磁気渦の回転運動が理論的に予言されている。講演では、 これらに関する実験の現状について述べるとともに、前述の磁気渦におけるスピントラン スファー効果の実験で観測される新しいスピン波についても紹介する。



Fig.1 磁気渦構造の模式図



Fig.2 ローレンツ顕微鏡によるカイラリティの観測

### 試料電界強度を制御した PEEM による絶縁物観察への展開

<sup>\*</sup>吉川英樹<sup>1)</sup>、安福秀幸<sup>1)</sup>、木村昌弘<sup>1)</sup>、田村圭司<sup>2)</sup>、志水隆一<sup>2)</sup>

### 物質・材料研究機構<sup>1)</sup>、大阪工業大学<sup>2)</sup>

光電子顕微鏡 (PhotoEmission Electron Microscopy: PEEM)は、高い空間分解能で試料表面の イメージングが行える優れた手法である。特に結像型のPEEMは、走査型のPEEMに比べて動 的なイメージングに適しており、加えて対物レンズにカソードレンズを搭載することにより、数 eV~100eVの低速光電子に対する良好な収差係数の故に高い空間分解能を実現することが出来 る。しかしながら、カソードレンズを搭載した通常の結像型PEEMでは、試料に強電界(10 kV/mm オーダー)が印加されているため、次のような理由で絶縁物観察が困難という問題を生じている。 試料に強電界が存在する場合、試料表面が等電位面にならず、電位の面内のムラがPEEM像に影響してしまう。また試料電位を対物レンズに対して負の高電圧にすることは、光電子放出に伴う 試料表面の正電荷のチャージアップの程度を促進してしまう。

上述した絶縁物の観察が困難な結像型 PEEM において、その困難さを解決するために、我々 は試料表面の電界強度を制御できる機能を持つ PEEM を開発し、それを絶縁物観察に応用した。 ここで言う電界強度の制御とは、「電導性の試料については高空間分解能を期待して試料に強電 界を印加し、絶縁性の試料については試料の電界強度を大きく低減する」と言う使い分けをする ことを意味している。これを実現するために、電場磁場重畳型の対物レンズとし、しかも磁界レ ンズの外側ヨークと内側ヨークを分離し、試料に対面している外側ヨークのみの電位を自由に変 えられる構造としている。なお、外側ヨークと内側ヨークの間は、電気的には絶縁されているも のの、磁界レンズの磁気回路としては繋がっている。

試料の電界強度を低減させ対物レンズ近傍で光電子を後段加速する電子光学系での結像特性は、Rose らによって理論計算から予測されていたが、今回初めて実験的に結像特性を明らかにした。その結果を図1に示す。図中、丸印は実験データ、3本の線は異なる working distance における理論計算結果を示している。試料と対物レンズ間の電位差を低減するに伴い対物レンズの励磁電流を低減する様子が明らかとなり、2次電子領域の低速電子に対して1桁を越える電界強

度低減を実現できることが実験的に明らか となった。なお、電位差の低減に伴って対物 レンズの励磁電流値が下がるのは、外側ヨー クの開口部から試料側に浸み出している静 電場によるレンズ効果が原因で、この円孔レ ンズとバランスさせるように磁界レンズの 励磁電流を制御することになる。

試料上の電界強度を制御できる対物レンズの完成を見ることが出来、これを用いた 実際の絶縁性試料である積層PZTの観察例 を紹介する。

謝辞:装置上の開発にあたってご尽力頂きました日本電子(株)工藤政都博士、境悠治博 士、嘉藤誠博士、小川武人氏、ならびにPZT 試料についての多大なご協力を頂きました 太平洋セメント(株)福永了一博士、(株) ヨコオ 山川孝宏博士、東京工業大学 篠崎 和夫先生には厚くお礼申し上げます。



図 1 試料と対物レンズの間の電位差を制御した際の低速光電子を結像する電子光学条件。WD は working distance を意味している。実線、破線、 一点鎖線は、各 WD 値での特性の計算値である。

## 多極子 Wien filter EXPEEM の開発と表面触媒反応

朝倉清高、新美大伸、宮本剛志 北海道大学触媒化学研究センター

触媒表面では、反応中各活性サイトがダイナミックに相互作用して、反応を進行さ せており、その反応メカニズムは複雑である。こうした反応メカニズムを規定するた めには、活性サイトごとの化学状態の変化を追跡するとともに、そのサイト間の物質 移動を通じた相互作用を反応条件下で追跡することが必要である。われわれは、X線 により励起された光電子のエネルギーを分析して結像する EXPEEM(Energy filtered photoemission electron microscopy)法による触媒表面化学マッピングの可能性について 検討してきた。一般に用いられる半球型の電子エネルギー分析器では、光軸が折れ曲 がるため、光軸調整が難しい。一方電場と磁場を直交させてかける Wien filter 型エネ ルギー分析器では、光学系を直線に配置できるという特徴を持つ。これまでに、Au および Ta のX線光電子による表面マッピング像を得ることができたが、測定するの に多くの時間を必要とした。そこで、図1に示すように、口径を広げ、これに伴って 増大する Wien filter 内の収差を低減するため多極子型 Wien filter を開発した。多極子 化することで、高次の収差補正を行うことができ、計算上20倍の感度増加になると 期待される。実際には、Wien filterの調整パラメータが増えるので、その最適化は困 難が予想されたが、この新しい多極子 Wien filter を用いて、エネルギーX 線光電子に よるエネルギー選別像を得ることができた。



図1 従来型の Wien Filter(A)と多極 子 Wien filter (B)。(A)では、磁極と して鉄心入りヨークを使っているの で、電子の通る口径が小さくなる。 (B)はヨークをのぞき、口径を大きく して感度を上げる。この時に、収差が 大きくなるが、収差のフーリエ成分を 0にするように多極子の電磁極を調 整する。



図 2 エネルギー選別 X 線光電子分光像 EXPEEM サンプルは Ta 上の金である。

## LEEM/PEEM における検出器による分解能劣化

大阪電気通信大学 清水宏\*、安江常夫、越川孝範

### 概要

LEEM、PEEMの空間分解能は一般的に対物レンズの球面収差、色収差に依存するといわれている。しかし空間分解能を極限まで高めるには、上記電子光学系の本質的な収差のみならず、電気的、機械的ノイズによる擾乱や検出器等の諸特性を考慮しなければならない。我々は電子光学系以外の、検出器と CCD カメラが分解能を制限している結果を得たので報告する。

#### 実験と結果

適切な分解能評価を行うためには、可能な限り平坦な観察試料が望まれる。そこで我々は Si(111)(7x7)構造上に(5x5)構造をもつ Cu 二次元島が成長することに着目し、これを 250℃付近で 作製し、室温下で LEEM 観察を行った。また鏡筒内での変動磁場が分解能に影響を与えていたた め磁場発生源である CCD カメラ、及び、電源トランスの磁気遮蔽を施した。LEEM は除震台の 上設置し、機械的振動を除去した。

観察した LEEM 像(像の画素数: 1024 x 1024)において空間分解能を算出するため、Cu 二次元 島の境界付近のラインプロファイルを測定し、強度の高低差の 14%から 86%までの画素数を算 出した。図1に測定の一例として視野径 2µm φにおける観察像とそのラインプロファイルを示す。 この場合、8 画素分が空間分解能となり、約 16nm に相当する。この方法に従って、各視野径で の画素数を算出した結果を図 2 に示す。この測定結果では視野径が 10~20µm φの間で画素数が ほぼ一定の 3.8 となった。これは検出器や CCD カメラに起因するもので、それぞれ、画素数にし て 3.4 画素、1.7 画素分に相当するボケの広がりを有していることが、別の測定結果から判明した。 本講演ではこれらの詳細について述べる。



図 1(a) 視野径 2µm¢の LEEM 像(一部を拡 大)、(b) (a)の点線上のラインプロファイル



図 2 各視野径での観察像から算出した二次 元 Cu 島境界の広がり。縦軸は画素数。

(\*現 アルバック・ファイ株式会社)

## Au-Si合金島の原子ステップへの配列 Arrangement of Au-Si alloy islands at atomic steps on Si(111)

NTT物性科学基礎研究所 日比野浩樹、渡辺義夫<sup>\*</sup> NTT Basic Research Laboratories, Hiroki Hibino and Yoshio Watanabe<sup>\*</sup>

半導体ナノ構造の作製手法を大別すると、トップダウン的な微細加工法とボトムアップ的な自己形成法があ る。自己形成法は、低コスト・大規模・高品質等の潜在的な利点を有するが、サイズや位置等の制御性には課 題が多い。我々は、これまで、半導体表面構造の原子スケール制御に基づき、ナノ構造をウェハースケールで 自己組織的に形成する手法を開拓してきた[1]。本報告では、シリコン表面の原子ステップ配列をテンプレートと して用いることにより、金-シリコン合金島を位置やサイズを制御して自己形成できることを示す。

図1は、Si(111)表面に約 1.05 原子層の Au を蒸着後の低速電子顕微鏡(LEEM)像である。蒸着は二段階 で行い、基板温度約 710℃で、1原子層未満の Au を蒸着し、√3×√3 構造を形成した後、基板温度を 400℃付 近まで下げ、さらに Au を蒸着した。第二段階の蒸着中、表面が√3×√3 構造から 6×6 構造に変化してから短時 間の後、三次元島がステップ端にほぼ同時刻に出現した。このため、どの島についても成長時間が等しくなり、 サイズの均一な島が形成される。実際、原子間力顕微鏡を用い測定した三次元島の高さ分布は、10%程度の サイズばらつきを示した。また、同じ温度で基板を保持し、三次元島の数を減少させたのち、さらに Au を蒸着 すると、三次元島は、単層深さの溝を後方に残しつつ上段テラスへと侵入した。このことから、三次元島が Au と Si の合金からなる液滴であることがわかる。また、図 2 に示されるように、三次元島は、テラス上ではほぼ一 定の速度で移動するのに対し、テラスを渡りきり、上段側のステップに近づくと、ステップ端へとジャンプする。こ のことは、三次元島がステップ近傍に安定に存在することを意味し、Au-Si 合金島がステップを用いた配列制御 に適していることがわかる。

\*現所属 NTTアドバンステクノロジ株式会社

[1] 例えば、T. Ogino, H. Hibino, Y. Homma, Y. Kobayashi, K. Prabhakaran, K. Sumitomo, and H. Omi, *Acc. Chem. Res.* 32, 447 (1999).



図 1: 基板温度約 400°C で Au を蒸着後の Si(111)表面の LEEM 像と断面の模式図。



図 2: (a)から(c)の LEEM 像中の円で囲まれた島の移動距 離を時間の関数としてプロットした。

## LEEM In-situ observation of the growth of implant source grown Ga nanodots on SiO<sub>2</sub>

Ryan Buckmaster<sup>1</sup>, Fangzhun Guo<sup>2</sup>, Keisuke Kobayashi<sup>2</sup>, and Takafumi Yao<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Institute of Materials Research, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan

<sup>2</sup> SPring-8/JASRI, Kouto 1-1-1, Mikazuki, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan

<sup>3</sup>Center for Interdisciplinary Studies, Tohoku University, Aramaki, Aoba-ku, Sendai 980-857, Japan

To be successful beyond the laboratory, future nanotechnologies for electronic applications must be able to control self-assembly as well as be compatible with existing fabrication technologies. Recently the growth of controlled Ga-based nanostructures by locally implanting Ga in SiO<sub>2</sub> followed by annealing has been reported which may satisfy these criteria [1,2]. The Ga nanodots also shows a number of interesting phenomenon, in particular a transition from SiO<sub>2</sub> capped nanodots to surface Ga nanodots as the implanted Ga ion dose increases. To better understand the Ga nanodot formation and phase transitions, Ga implanted 60nm SiO<sub>2</sub> thermal oxide films on Si were observed in-situ by LEEM while being annealed.

Despite the fact that the  $SiO_2$  films presented no charge-up problems during implantation by a Ga focused ion beam or SEM observation, significant charge-up was observed by LEEM, although samples could still be observed by mirror mode and the nanodots were observable, especially in large implanted areas. Also capped nanodots demonstrated a leaky capacitor-like effect when the start voltage was increased.

Additionally the LEEM electron beam had other significant effects on the samples. When the LEEM field of view was moved to a new area an "etching" effect was observed as a new area of the sample was charged-up and came into equilibrium. Subsiquent observation by high resolution SEM showed that the edge of the LEEM electron beam resulted in nucleation of a high density of small surface nanodots even at low temperatures. Also during in-situ annealing small capped nanodots were observed ripening into surface nanodots, but at far lower temperatures than expected. Thus we conclude that the LEEM electron beam resulted in significant enhancement of Ga diffusion in  $SiO_2$  and nucleation on the  $SiO_2$  surface.

<sup>[1]</sup> R. Buckmaster, T. Hanada, Y. Kawazoe, M-W. Cho, T. Yao, N. Urushihara, and A. Yamamoto. *Nano Lett.* **5** (2005) 771-776.

<sup>[2]</sup> R. Buckmaster, J.H. Yoo, K. Shin, Y. Yao, T. Sekiguchi, M. Yokoyama, T. Hanada, T. Goto, M. Cho,

Y. Kawazoe, and T. Yao. Microelectronics J. 36 (2005) 456-459.

#### ペンタセン薄膜成長過程の LEEM および STM による微視的解析

藤川安仁, Jerzy T. Sadowski, 櫻井利夫

東北大学金属材料研究所

近年注目を集め始めている有機半導体の中でも、ペンタセン(C<sub>22</sub>H<sub>14</sub>)はアモルファスシリコンを越え るキャリア移動度を持つことから特に多くの研究が行われており、酸化物から金属に至るまで幅広い 基板上に対して容易に薄膜成長が可能である事が知られている。

本研究では、ペンタセン分子とこの様な様々な基板間との相互作用が、基板表面の電子状態に大き く依存する[1]事に着目した。ペンタセン薄膜の成長はペンタセン分子間およびペンタセン分子--基板 表面間の2種類の相互作用の間の釣り合いによって決定されると考えられる。基板がシリコン酸化膜 のような絶縁体の場合はペンタセン-基板間の相互作用は弱い Van der Waals タイプのものとなるため、 ペンタセン薄膜は成長初期よりバルク構造に近い層状構造を取って成長することが可能であり、その 層状構造の中でペンタセン分子は基板表面に対して立った形の配向をとる。しかし、この様な系では 基板-表面間の相互作用が小さすぎるために島状成長を起こし、薄膜の均一性を分子層レベルの厚み で保つのは困難である。これに対してフェルミ準位近くに高い順位密度を持つ金属表面上における成 長では、ペンタセンの π 軌道はこの金属的な準位と強く相互作用を起こすため、分子は表面上に横に なった形の配向をとる事が知られている。そのため界面に於いてペンタセン分子はバルクとは全く異 なる配向をもつ結果となる。

上記の問題点を解決するため、本研究では半金属であるビスマス薄膜を Si(11)表面上に成長し[2]、 その上にペンタセン薄膜成長を試みた。その結果、ビスマス薄膜の上ではペンタセン分子が第1層目 から立った状態でバルクと同じ層状構造をとってエピタキシャル成長する事が判明した[3]。LEEM お よび STM による解析結果から、このエピタキシャル成長においては、殆どバルクと同じ格子定数をも っペンタセン薄膜の片方の結晶軸が基板であるビスマス薄膜の結晶軸に対して揃う形で非常に整合性 の高い界面を形成する事が判明した。さらに、LEEM によるドメイン端形状の観察結果から、この単 分子層ドメインの大きさは直径 0.2 mm にも及ぶ事が判明し、ペンタセン単分子層の成長においてバル クの結晶構造と薄膜の連続性が両立していることが分かる。これらの結果から、ペンタセン薄膜の結 晶成長制御において、基板表面の活性に直結する電子状態の制御が重要な役割を占めている事が示さ れた。

G. E. Thayer, J. T. Sadowski, F. Meyer zu Heringdorf, T. Sakurai, R. M. Tromp, Phys. Rev. Lett., pending
 T. Nagao, J. T. Sadowski, M. Saito, S. Yaginuma, Y. Fujikawa, T. Kogure, T. Ohno, Y. Hasegawa, S. Hasegawa and T. Sakurai, Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 105501

[3] J. T. Sadowski, T. Nagao, S. Yaginuma, Y. Fujikawa, A. Al.-Mahboob, K. Nakajima, G. E. Thayer, R. M. Tromp and T. Sakurai, Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 073109

## In/Cu(001)および Sn/Cu(001)表面における相転移の LEEM 観察

京大院理、JASRI<sup>A</sup> 八田 振一郎、郭方准<sup>A</sup>、奥山 弘、有賀 哲也

In/Cu(001)およびSn/Cu(001)表面においてCDW転移が起こることが報告されている[1,2]。これらの表面では非常に類似した表面電子状態が観察されており、共通した相転移機構を持つのではないかと考えられる。今回LEEMの暗視野像の観察により、相転移におけるドメイン構造やコントラストの温度変化を追跡し、SPMでは測定困難な広範囲の実空間像から相転移のダイナミクスの解析を試みた。

実験は SPring-8 に導入された分光型光電子・低エネルギー電子顕微鏡(SPELEEM) を用いて行った。In/Cu(001)表面については、被覆率 0.5 ML で起こる(9√2×2√ 2)*R*45°⇔c(2×2)の相転移について LEEM 観察を行った。室温で蒸着を行いながら超 構造スポットの強度をモニターし、最大となった表面を用いた。このようにして作成し た(9√2×2√2)*R*45°表面は、互いに 90°回転した関係にある2種類のドメインによっ て覆われている。これは異なるドメインから得られた暗視野像が反転したコントラスト を示すことから確認できる。図1(a)では、0.3 µm 程度のサイズを持ったドメイン構造 が観察できる。この構造は昇温とともにコントラストを失い、約350 K 以上において完 全に均一な図1(b)の像となる。このような転移の振る舞いは LEED による報告とよく 一致する。これを再び室温に戻すと、昇温前と比べて平均的なサイズはほぼ変わらない が、異なるパターンを持つ表面が観察された。これは観察されている構造がステップや 欠陥などによって固定されたものでなく、ドメイン境界の揺らぎを反映したものである ことを示している。また、暗視野像の強度の標準偏差を温度に対して並べると、指数 1/4 で減衰していることが分かった。現在相関長などについての解析も試みている。同 様に、Sn/Cu(001)表面についても解析を試みる予定である。

[1] T. Nakagawa et al., Phys. Rev. Lett. 86, 854 (2001).

[2] J. Martínez-Blanco et al., Phys. Rev. B 72, 041401(R) (2005).



図1 暗視野像(\phi5\mum) (a) 300 K (b) ~355 K

## Pb/W(110)成長過程における LEEM のステップコントラスト反転

1大阪電通大、2アリゾナ州立大

安江常夫<sup>1</sup>、天川良太<sup>1</sup>、清水宏<sup>1</sup>\*、中口明彦<sup>1</sup>、高橋宏彰<sup>1</sup>、E.Bauer<sup>2</sup>、越川孝範<sup>1</sup> email yasue@isc.osakac.ac.jp

W(110)上での Pb の成長過程を低エネルギー電子顕微鏡(LEEM)で観察すると、 1ML以下の成長途中で単原子ステップのコントラストの反転が見られたので、その要 因について検討を行った。図1に成長途中の LEEM 像を示す。(a)の清浄表面で暗い コントラストであったステップが、Pb の蒸着に伴い(b)に示すように明るいコントラ ストとなり、その後(c)に示すように再び暗いコントラストへと変化する。通常の干渉 効果によるステップコントラスト形成メカニズム[1]ではこの反転を説明することが できない。そこでステップとテラスの LEEM 強度が被覆率とともにどのように変化す るかを測定した結果を図2に示す。図に見られるように、ステップコントラストの反 転は、テラスの強度とステップ強度の大小が、Pb の蒸着により相対的に変化するた めであると考えられる。吸着初期には2次元のガス状の Pb が存在するためテラス強 度の急激な減少が起こるが、ステップ近傍では Pb 密度が低くなっており、ステップ 強度の減少が小さいため強度の反転が起こることが考えられる。その後2次元ガスの 凝集・結晶化が始まることが LEED パターンから確認された。凝集・結晶化が進むに つれテラス強度が回復し、再びステップ強度より大きくなると、コントラストの反転 が起こり、清浄表面と同じく暗いステップコントラストが観察される。しかし、ステ ップコントラストのプロファイルを詳細に観察すると、上記のような単純なモデルだ けでは説明できない現象も見出している。

講演では2次元ガス相からの凝集・結晶化における吸着構造の変化を LEED パター ンから解析した結果についても報告する。

[1] W.F.Chung and M.S.Altman, Ultramicroscopy 74 (1998) 237.

\*現在:アルバック・ファイ(株)



図1 W(110)上への Pb 吸着によるステ ップコントラストの反転

## LEEM、制限視野 LEED および化学分析 SR-XPEEM を用いた

## In/Si(111)上の Sb の成長過程の動的観察

中口明彦、郭方准1、橋本道廣、上田将人、安江常夫、木下豊彦1、小林啓介1、越川孝範

## (大阪電通大、<sup>1</sup>JASRI)

InSb は高い電子移動度や小さなバンドギャップのために、赤外線検出器、高速デバイス、磁気センサな どの役に立つ。今回は SPring-8 で行った LEEM、制限視野 LEED そしてシンクロトロン放射光による化学 分析 XPEEM(SR-XPEEM)を用いた In/Si(111)の $\sqrt{3}x\sqrt{3}$  と $\sqrt{3}1x\sqrt{3}1$ の二つの異なる構造上の Sb の成長過程につ いて報告する。

図.1(a)に In/Si(111)の $\sqrt{3x}\sqrt{3}$ (暗領域)と $\sqrt{31x}\sqrt{31}$ (明領域)の LEEM 像を示す。図.1(b)は Sb を蒸着し、元 $\sqrt{31x}\sqrt{31}$ 領域のコントラストが明から暗へ、そして暗から明へと変化した後の LEEM 像である。コントラストが変 化した後、元 $\sqrt{3x}\sqrt{3}$ の領域は 1x1 構造に、そして元 $\sqrt{31x}\sqrt{31}$ の領域は 2x2 構造に変化した。ここで、二つの 異なる領域間の In の拡散を調べるために、SR-XPEEM により In の 3d と Sb の 3d からの XPEEM 像の取得 を試みた。図.2(a)に In/Si(111)上に Sb を蒸着した場合の In(3d)の SR-XPEEM 像と各局所領域(白丸)からの In と Sb の XPS スペクトル{(b)と(c)}を示す。XPS スペクトルから(1)より(2)の領域の方が In の強度が高いと考 えられる。しかし、(2)の領域における Sb 蒸着前の In/Si(111)上の In の強度は低かった。このことは元 $\sqrt{31x}\sqrt{31}$ から $\sqrt{3x}\sqrt{3}$ 領域への In 原子の非常に大きな拡散を示すと考えられる。最終的に、蒸着を続けていくと In の 三次元島が形成された。



図.1 Sb/ In/Si(111)の LEEM 像。 (a)Sb 蒸着前、(b)Sb 蒸着後。 Ep=10.4 eV, FOV:10µm。

図.2 XPEEM 像 (a)In/Si(111)上の Sb の In(3d)、 そして(1)と(2)の局所領域からの XPS スペクトル(b)In(3d)と(c)Sb(3d)。

## LEEM および制限視野 LEED による W(110)上の Cu 二重層構造変化

中口明彦、清水宏\*、高橋宏彰、<sup>1</sup>Ernst Bauer、安江常夫、越川孝範

(阪電通大エレ研、<sup>1</sup>アリゾナ州立大、\*現アルバック・ファイ)

本研究では、Layer-by-layer 成長する基板温度 100°Cでの Cu/W(110)薄膜成長を LEEM と LEED により詳細 に観察を行った。オージェ強度は 1ML、2.13ML でクニックをもつことから層状成長をしているという報告 がある[1]。しかし、表面から垂直方向に放出されるオージェ信号強度は 2.13~2.47ML 間で被覆率に対して ほとんど増加しないという結果が報告されている[2]。LEEM により直接・動的観察した結果、2.13ML 付近 で二層目(15 x 1)が完成後、すぐに三層目が成長するのではなく、15x1 から bilayer Cu(111)~の構造変化が生 じ、その後 2.47ML 付近から 3rd layer Cu(111)が成長することが確認された。図1は  $\theta$ =2.30ML の成長過程 の像であり、明と暗の二種類の領域が観察されている。2.13~2.47ML 間で被覆率の増加と共に明領域が次 第に拡がっていく様子が観察された。また、LEED スポットの強度から図1の暗領域では 15x1、明領域で は Cu(111)の成分が大きいことが確認された。このことは第三層の形成前に Cu 二重層が 15x1 から Cu(111) へと構造変化する様子を示しており、LEEM により初めて bilayer の構造変化が直接観察された。

[2] G. Lilienkamp, C. Koziol and E. Bauer, Surf. Sci. 226(1990)358.



図 1. LEEM 像

FOV=10µm, Ep=7.5eV, θ=2.30ML 暗領域:15 x 1、明領域: bilayer Cu(111)

## PEEM・LEEM によるグラファイト基板上のペンタセン薄膜成長

塩野入正和、小笹桃子、富山直之、解良聡、奥平幸司、上野信雄 千葉大学工学部電子機械工学科 〒263-8522 千葉市稲毛区弥生町 1-33 E-mail: noiri.16@graduate.chiba-u.jp

【序】現在多くの注目を集める有機デバイスの性能は、キャリア移動度に大きく左右され るが、この制限要因として有機薄膜中の結晶粒界の存在が挙げられる。結晶粒界の密度は 有機薄膜の成長初期段階でほぼ決定される。よって、キャリア移動度の向上には、膜成長 初期段階での核生成と成長機構に関する知見を得ると同時に成長を制御する必要がある。

本研究では、高いキャリア移動度を示し有機デバイスへの応用が期待されるペンタセン (C22H14)を、分子 - 基板間相互作用が小さい高配向性熱分解グラファイト(HOPG)基板上に 段階的に真空蒸着し、薄膜の成長過程を PEEM・LEEM により観測した。

【実験】HOPG 基板は大気中で劈開後、超高真空中に導入し加熱清浄化(673K,~60h.)した。 基板上にペンタセンを段階的に真空蒸着し(蒸着時圧力:~2.5×10<sup>-7</sup>Pa)、PEEM (D2 ランプ: h <6.8eV)・LEEM (Ei 5eV)により観測した。

【結果・考察】Fig.1 に HOPG 基板とペンタセンを (a) 3 まで蒸着した PEEM 像(a-c)、LEEM 像(d-f)を示 す。像の視野径は全て約 67µm である。PEEM 像で は、基板とペンタセン2 蒸着後(a, b)までに顕著な 変化は確認できない。これは、分子の吸着がない、 または、吸着分子と基板とで光電子放出量に大きな 差がないことを示している。3 蒸着後(c)には無数 の輝点が出現しており分子の吸着が確認できる。こ れらは PEEM 像で明るく観測されているので、ペ Fig.1 pentacene/HOPGの PEEM 像とLEEM 像 FOV=67 µm ンタセン島構造のイオン化エネルギーが基板また



(a)~(c): PEEM像 (HOPG 基板、pentacene 1 ,3 ) (d)~(f): LEEM像

は1分子層目に比べ小さいことがわかる。一方、LEEM 像では基板で確認されたステップ バンチが2 蒸着後見えなくなると同時に、新たなコントラストが出現している(e)。3 蒸 着後には"新たな"コントラストは消失し、全体がほぼ均一になっている。よって、3 蒸 着後には1分子層目の形成が終了しいている。ペンタセンは基板表面に対し分子の長軸を 立てて配向する方が分子平面を平行に配向するよりもイオン化エネルギーが小さいことが わかっている[1]。したがって、ペンタセンは1分子層目で基板表面に対し分子平面を平行 に配向し、2 層目では長軸を基板表面に対し立つように配向していると考えられ、また成 長様式は Stranski-Krastanov 成長であることが確認された。さらに、同一基板表面上での場 所によって異なるペンタセン島構造の成長様式の違いも確認された。これは、基板表面の 欠陥に影響されたと考えられるが、詳細は当日発表する。

[1] H. Yamane et al,. IPAP conference series 6, 19

### Availability of PEEM to Detect Electric Field of $p^+n$ -Si(100) substrates

Hirokazu Fukidome, Masamichi Yoshimura, and Kazuyuki Ueda Nano High-Tech Research Center, Toyota Technological Institute, 2-12-1 Hisakata, Tempaku-ku, Nagoya 468-8511.

PEEM is a promising tool to microscopically detect physical properties of surface and interfaces. Physical properties of silicon of narrow bandgap can be varied in relatively narrow temperature range, so that the temperature-sensitivitity is used to microscopically investigate the properties of surfaces and interfaces.

Fig. 1 shows a typical PEEM images taken at 173 K. Intensity ratio  $(I(n)/I(p^+))$  at various temperature is plotted in the lower diagram, and it is found that the ratio increases with temperature. The intensity is determined by band bending that varies probably due to the temperature-sensitive surface photovoltage effect (SPV) at a lower temperature region, and a shift of bulk Fermi level position by thermally excited carriers at a higher temperature region.

Fig. 2 shows the PEEM images of the substrates covered with ultrathin Al film (5Å). Deposition of Al reduces the intensity ratio of  $n/p^+$  regions. On the other hand, a characteristic bump appears at the boundary of the  $n/p^+$  regions, especially at a low temperature. The appearance of the bump can be related to a redistribution of emitted electrons owing to the deflection of trajectories of the electrons by lateral electric fields at the surface, and the analysis of the bump makes it possible to quantify the lateral distribution of electric field [1]. This result indicates that PEEM can observe stray electric field of buried interfaces. X-PEEM observation for the quantitative crosscheck for the above results may be presented.

Reference: [1] S.A. Nepjiko et al., Adv. Imaging Electron. Phys. 136 (2005) 227.



Fig.1 A PEEM image of  $p^+n$ -Si(100) and temperature dependence of the intensity ratio.



Fig. 2 PEEM images of 5Å Al/H/ $p^+n$ -Si(100) and their cross sections.

## Cu/W(110)における UV-PEEM コントラストメカニズム

<u>越川孝範</u><sup>1</sup>、清水宏<sup>1</sup>、中口明彦<sup>1</sup>、高橋宏彰<sup>1</sup>、安江常夫<sup>1</sup>、E.Bauer<sup>2</sup> <sup>1</sup>大阪電通大、<sup>2</sup>アリゾナ州立大

昨年の研究会で、Cu/W(110)の水銀ランプ励起による PEEM において、Cu 層の膜厚 により光電子強度が増大し、これまで言われてきた仕事関数による PEEM 像の解釈が 困難であることを指摘した。今回はさらに解析を進めたので、その結果について報告 する。

図(a)は W(110)上に成長した Cu 多層構造の UV-PEEM 像である(視野径は 10µm)。 図中に示したNはCuの層数であり、膜厚が厚くなるにつれ光電子強度が上昇してい ることがわかる。仕事関数については、被覆率が 2ML 付近で極小値を取り、その後 仕事関数が大きくなることが報告されている。仕事関数だけを考慮すると、膜厚の上 昇により光電子強度が小さくなることが予想され、実験事実が説明できない。ここで は、Cu 層からの光電子放出が支配的であると考え、Cu の被覆率に応じて光電子収量 が増大すること、および仕事関数の変化により脱出確率が変化することを考慮して解 析を行った。その結果を図(b)に示す。ここでは Cu を蒸着しながら PEEM 像を連続的 に取得して、光電子強度を測定した。いくつかのシンボルは実験結果であり、何回か の測定結果を示している。実線は上述の過程により計算した光電子強度である。仕事 関数変化による脱出確率の変化については、ポテンシャルの高さが変化することによ る屈折効果を考慮した。図から明らかなように、実験結果では被覆率が1MLから2ML の間で、光電子強度の上昇が抑制されており、2ML 以降で急激な強度の上昇が見られ る。以前に報告したように 1ML から 2.13ML では Cu 第 2 層が 15×1 構造を示してお り、2.13ML から 2.47ML の間で fcc 構造へと構造変化を起こすことがわかっている。 したがって、15×1構造が形成されている間は、光電子強度が低いことがわかる。

現在この理由について表面準位の影響なども含めて考察を進めており、その詳細に ついては当日報告する。



## UV-PEEMによる反強磁性ドメインの直接観察

JASRI、東大物性研<sup>A</sup>、 郭方准、孫海林<sup>A</sup>、奥田太一<sup>A</sup>、小林啓介、木下豊彦

磁化方向と偏光の相対関係による吸収スペクトルには差が発生し、これによる磁気円二色 性(XMCD)と磁気線二色性(XMLD)が知られている。放射光と光電子顕微鏡の組み合わせは、 これらの特性を活かして強磁性または反強磁性のドメイン構造研究に用いられている。最近、 我々は偏光子なしでも類似の現象が起こることを見出し、水銀ランプ照射だけで PEEM によ る反強磁性ドメイン観察に成功した。

実験試料は NiO(001)単結晶で、装置は ELMITEC 社製の分光型光電子・低エネルギー電 子顕微鏡(SPELEEM)と ORIEL 社の水銀ランプ(200W)を使った。試料を大気中でヘキ開 して真空チャンバーに導入し、308K の温度下で数時間脱ガスした。得られた PEEM 生画像 の一例を図 1a に示す。この像の視野は 75µm であり、像の取得時間は 12 秒である。表面 にはステップが見えるが、結晶の[100]、[110]、[010]方位に沿ったコントラストが明らかに 見える。これらのコントラストは確かに反強磁性ドメインであることを確認する為に、試料 方位と入射光の相対角度変化及び温度依存性を実験してみた。試料を面内 45°回転した PEEM 像を図 1b に示す。コントラストは殆ど消えたことが分かる。入射光は直線偏光子を 使っていないが、s-と p-偏光成分が位相関係なしに混ざっていると考えられる。今回の実験 結果はそのうちの s-成分が磁気光学効果を起こした結果現れたものと考えられる。 SPELEEM は感度が高く、僅かな s-偏光成分による光電子励起の差も捕らえていると考えら れる。s-偏光の場合、試料方位変化の結果は今まで報告された XMLD[1]の実験と一致する。 図 1a から、反強磁性ドメインは表面のステップを貫通し、表面ステップ及び欠陥に影響され

ず、バルクのドメイン構造に強く影響さ れることが分かる。実験では、ネール温 度以上でコントラストが消え、再び温度 を下げるとコントラストが出現すること も確認できた。また、再び室温で観測し た反強磁性ドメインは、サイズが大きく なり、一部のドメインは表面ステップの 影響を受けることが分かった。これはへ キ開の段階で表面にできた応力が加熱に よって開放されたためであると解釈して いる[2]。



図(1a)、水銀ランプと SPELEEM によって得た PEEM 画像(視野 75µm)。(1b) 45° 面内回転し た後の同視野 PEEM 像。

[1] Stöhr *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83** (1999) 1862.
[2] F.Z. Guo *et al.*, to be submitted.



[1] S. Imada et al., Jpn. J. Appl. Phys. Vol.39 (2000) pp. L585
[2] Fukuma et al. Physica E10 273 (2001)

gundary g

В

PEEM

PEEM

**HiSOR** 

8 2 : Co L<sub>2,3</sub>端での磁区構造



図3:GeMnTeの低温での Mnの空間分布と磁区構造

## 放射光 SPELEEM を用いた In/Si(111)の高分解能化学効果の観察

1大阪電通大、2JASRI、3アリゾナ州立大

清水 宏1,\*、中口明彦1、郭方准2、脇田高徳2、安江常夫1、小林啓介2、E.Bauer3、越川孝範1

### 概要

Si(111)表面上の In 薄膜は基板温度、蒸着量に応じて様々な構造をもつ事が知られている。そこで、放射光を光源とした SPELEEM (Spectroscopic Photoemission Electron microscope and Low Energy Electron Microscopy)を用いて局所領域 XPS 観測、及び LEED 観察を行い、化学結合状態とその結晶構造依存性を調べた。

### 実験と結果

実験はSPring-8、軟X線ビームライン(BL27SU)で行った。約 500℃の基板温度おいて、Si(111) 清浄表面上に(1x1)構造のIn二重層を作製後、室温下でIn3 次元島を作製した。図 1 に観測結果で あるIn-3d<sub>5/2</sub>、3d<sub>3/2</sub>のXPSスペクトルを示す。放射光のエネルギーは 530eVである。スペクトル

C

LEEM

左上に二重層と 3 次元島の LEEM像(視野径 20µmφ)を示 し、XPS観測を行った領域 (1.3µmφ)を丸印で示した。3 次 元島から得たピークはIn-In結 合に起因すると考えられるが、 二重層の場合はピークが同位 置であるもの高エネルギー側 にショルダーが見られた。また

同様に、約 500℃の基板温度において(√3x√3)、 (√31x√31)、(4x1)構造のIn薄膜をそれぞれ作製 し、室温下でXPS観測を行ったところ、高エネ ルギー側にピークが現れた。蒸着量が比較的少 ない(√3x√3)、(√31x√31)構造(それぞれ、0.3、 0.8ML)では、3 次元島の観察結果に比べ、ピー クが 0.5eV高エネルギー側にシフトし、Si-Inの 結合状態を反映していると推測された。また (√3x√3)構造に比べて、(√31x√31)構造は 0.1eV 程度エネルギー幅が広がっていることもわか った。(4x1)構造(約 1.8ML)では 2 つのピークが現

れ、それぞれの位置は前述のIn-In、Si-In 結合に起因するピークと同じ位置に現 れている。これらの詳細について本講演 で述べる。

(\*現アルバック・ファイ株式会社)



図1 LEEM 像と、異なる結晶構造に対する In の XPS スペクトル。 入射エネルギーは 530eV。左上は In 二重層、3 次元島の LEEM 像(視 野径 20µm、61.2eV)

## PF 研究会・ナノテクノロジー総合支援プロジェクトワークショップ 「LEEM/PEEM を用いた表面研究の新しい展開」報告

#### 大阪電通大 越川孝範

平成 17 年 10 月 12, 13 日, KEK 3 号館セミナーホールにおいて標記研究会が開催された。この 研究会は一昨年に SPring-8 で,また昨年は東大物性研で開催されたシンポジウムに引き続き開催 されたものである。我が国ではかなりの数の LEEM/PEEM が開発または導入されており,設置台 数では世界的に見ても随分多い。しかしこの分野への進出が遅かったこともあり,基礎的な結果 は出ているものの,ヨーロッパやアメリカに比べ成果が出遅れているというのが現状であり,今 後更に研究成果の充実を図るためには,実験上ならびに得られた結果に対して議論を深める必要 がある。そこで,本研究会は国内の LEEM/PEEM の研究者が参加し,ノウハウを含めて意見を交 換する機会を持つこと,また 2006 年 10 月に姫路で開催される「第 5 回 LEEM/PEEM 国際会議」 に向けて切磋琢磨することを目的として開かれた。現在国内で進行中の LEEM/PEEM 国際会議」 面研究に関する発表とそれらに基づく議論が行なわれた。参加者は異なる分野からの参加者もあ り 62 人であった。また 18 件の口頭発表と 8 件のポスター発表がなされ,盛況な PF 研究会となっ た。

北大の小池教授による「スピン SEM」に関する装置の開発の状況とそれを用いて得られた成果 に関する特別講演,名大の中西教授による「スピン偏極電子源」の開発とそのLEEMへの応用に 関する講演、東大の尾嶋教授による「放射光光電子顕微鏡によるナノイメージング・ナノ分光」 に関する講演での将来の装置開発に対する問題提起,東大の木村講師による「ナノスケール磁性 体」に関する依頼講演,NTTの日比野氏によるLEEMを用いたAuシリサイドナノ構造の生成過 程,さらに KEK の小野助教授のよる「放射光光電子顕微鏡による超高速現象観察」に関する講義 等があり、LEEM/PEEM に直接・間接に関連した内容であり、大いに討論が盛り上がった。一般 のロ頭発表やポスター発表でも新しい成果が発表され、分解能測定に関する問題提起等もあり我 が国のこの分野の研究が着実に進展しているということが確信できた。ポスターセッションでは、 学生を中心とした発表がなされ、活発な討論が行われている状況を見ると、若手研究者の育成も 期待でき LEEM/PEEM を用いた表面研究の将来が明るいことが認識できた。12日夕方の懇親会に は若手研究者や大学院生も多く参加し、小間所長の本分野への期待を含めた挨拶にはじまり、歓 談を交えた交流がなされた。さらに研究会・懇親会だけでは議論が足りないアクティブな研究者 のために、国際交流センターの交流ラウンジで2次会を開催し、まさに夜を徹してのLEEM/PEEM に関する議論を行った。

今回は、SPring-8 での PEEM 実験が順調に軌道に乗り始めたために、そこで出始めた成果や今後の利用についての議論で特に活気が見られた。また、将来の LEEM/PEEM を利用した新しい実験に向けての具体的な検討の進展に対しても、ユーザーの期待が高まっていた。LEEM/PEEM 分野の特色のひとつとして若手研究者の活躍の目覚ましさが挙げられるが、今回も若い研究者が多く参加した研究会であった。この分野のさらなる発展を可能にする若手研究者が着々と育ってきていることが本研究会により示された。

最後に、本研究会の準備、進行を助けてくれた小野助教授を始め、PFの事務スタッフ、学生諸 氏に感謝する。