

Thu. Nov 4, 2021

Room D

2:30 PM - 3:00 PM

Surface Analysis/Applied Surface Science/Evaluation Technique(ASS)

[2Dp01-05] ASS

Chair: Satoka Aoyagi (Seikei University)

1:30 PM - 3:00 PM Room D (Kotohira)

[2Dp01S] 3D atomic arrangement analysis of 2H-MoS₂ and Na intercalation by photoelectron holography

*Shunjo Koga¹, Yusuke Hashimoto¹, Soichiro Takeuchi¹, Masaki Tanaka¹, Zexu Sun¹, Tomohiro Matsushita¹ (1. Nara Institute of Science and Technology)

1:30 PM - 1:45 PM

[2Dp02S] Inverse Estimation of Common Peak Structure from Multiple Spectral Data

*ryo murakami¹, Hayaru Shouno¹, Kenji Nagata², Hiroshi Shinotsuka², Hideki Yoshikawa² (1. The University of Electro-Communications, 2. National Institute for Materials Science)

1:45 PM - 2:00 PM

[2Dp03S] Machine learning analysis for RHEED images using EM algorithm

*Asako Yoshinari^{1,2}, Yasunobu Ando³, Tarojiro Matsumura³, Masato Kotsugi¹, Naoka Nagamura^{1,2,4} (1. Graduate School of Advanced Engineering, Tokyo University of Science, 2. National Institute for Materials Science, 3. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 4. Japan Science and Technology Agency PRESTO)

2:00 PM - 2:15 PM

[2Dp04] Development of reciprocal-space-map evaluation method for three-dimensional Si structure surface with construction of multi-axes controlled RHEED system

*Tomoya Shimizu¹, Yuki Ida¹, Shunta Takahashi¹, Liliang N Pamas¹, Azusa N Hattori², Hidekazu Tanaka², Hiroki Momono³, Ken Hattori¹ (1. Nara Institute of Science and Technology, 2. SANKEN Osaka University, 3. Yonago College)

2:15 PM - 2:30 PM

[2Dp05] Realization of three-dimensional architected surface creation and investigation of novel structural and physical properties

*Azusa N. Hattori¹ (1. SANKEN, Osaka University)

Surface Analysis/Applied Surface Science/Evaluation Technique(ASS)

[2Dp01-05] ASS

Chair: Satoka Aoyagi (Seikei University)

Thu. Nov 4, 2021 1:30 PM - 3:00 PM Room D (Kotohira)

[2Dp01S] 3D atomic arrangement analysis of 2H-MoS₂ and Na intercalation by photoelectron holography

*Shunjo Koga¹, Yusuke Hashimoto¹, Soichiro Takeuchi¹, Masaki Tanaka¹, Zexu Sun¹, Tomohiro Matsushita¹ (1. Nara Institute of Science and Technology)

1:30 PM - 1:45 PM

[2Dp02S] Inverse Estimation of Common Peak Structure from Multiple Spectral Data

*ryo murakami¹, Hayaru Shouno¹, Kenji Nagata², Hiroshi Shinotsuka², Hideki Yoshikawa² (1. The University of Electro-Communications, 2. National Institute for Materials Science)

1:45 PM - 2:00 PM

[2Dp03S] Machine learning analysis for RHEED images using EM algorithm

*Asako Yoshinari^{1,2}, Yasunobu Ando³, Tarojiro Matsumura³, Masato Kotsugi¹, Naoka Nagamura^{1,2,4} (1. Graduate School of Advanced Engineering, Tokyo University of Science, 2. National Institute for Materials Science, 3. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 4. Japan Science and Technology Agency PRESTO)

2:00 PM - 2:15 PM

[2Dp04] Development of reciprocal-space-map evaluation method for three-dimensional Si structure surface with construction of multi-axes controlled RHEED system

*Tomoya Shimizu¹, Yuki Ida¹, Shunta Takahashi¹, Liliy N Pamas¹, Azusa N Hattori², Hidekazu Tanaka², Hiroki Momono³, Ken Hattori¹ (1. Nara Institute of Science and Technology, 2. SANKEN Osaka University, 3. Yonago College)

2:15 PM - 2:30 PM

[2Dp05] Realization of three-dimensional architected surface creation and investigation of novel structural and physical properties

*Azusa N. Hattori¹ (1. SANKEN, Osaka University)

2:30 PM - 3:00 PM

Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2021

光電子ホログラフィーによる 2H-MoS₂ および Na インターカレーションに関する立体原子配列解析

○古賀 峻丞, 橋本 由介, 竹内 走一郎, 田中 晶貴, 孫 澤旭, 松下 智裕*

奈良先端科学技術大学院大学

3D atomic arrangement analysis of 2H-MoS₂ and Na intercalation by photoelectron holography

○Shunjo Koga, Yusuke Hashimoto, Soichiro Takeuchi,
Masaki Tanaka, Zexu Sun, and Tomohiro Matsushita*

Nara Institute of Science and Technology

積層構造を持つ層状物質はその構造から得られる物性により半導体だけでなく、イオン電池の電極材料など応用は多岐にわたる。特に MoS₂ (硫化モリブデン) は Si やグラファイトに替わる次世代デバイス材料として注目されている。一方で、層状物質特有の現象であるインターカレーション反応は原子層間に他原子が入り込むことで層構造の変化に起因する可能性が報告されている。応用研究をする上で、欠陥や格子緩和の制御は重要な要素である。

しかし、挿入原子の局所原子配列の解析は困難である。結晶の場合、原子配列は並進対称性を利用した観測手法で測定できる。一方で、層間内に非周期に存在する挿入原子は並進対称性をもたないために通常の回折法は適用できない。このようなインターカレーションによる層構造変化の観測には、光電子ホログラフィー¹⁾が利用できる。本手法は特定の原子を中心とした周辺原子の局所原子配列を直接観測することが可能である。

本研究では、光電子ホログラフィー法を用いて Na インターカレーションを行った単結晶 MoS₂ を測定し、立体原子配列の解析を試みた。測定装置には、大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL25SU にて ±49° の広い取り込み角と高分解能を両立した阻止電場型電子アナライザ (RFA) を使用した。²⁾本手法は、表面敏感なため、測定には清浄表面が必要となる。そのため、RFA に一時的に接続可能な真空蒸着チャンバーを開発し、実験では MoS₂ 試料をチャンバー内にてスコッチテープで劈開したのち Na を蒸着した。

図 1, 2 に Mo 3d と Na 2p の光電子ホログラムを示す。観測する光電子の運動エネルギー E_k が 800 eV になる

ように軟 X 線を照射し、Mo 原子の 3d 軌道 ($E_B = 229$ eV) と Na 原子の 2p 軌道 ($E_B = 31$ eV) を励起して RFA で測定した。これにより、表面から 1, 2 層分の光電子ホログラムの観測に成功した。

本発表ではこれらの光電子ホログラムを基に立体原子配列の再構成を行い、インターカレーション後の層構造と挿入した Na の存在サイトに関する詳細な解析と結果を報告する予定である。

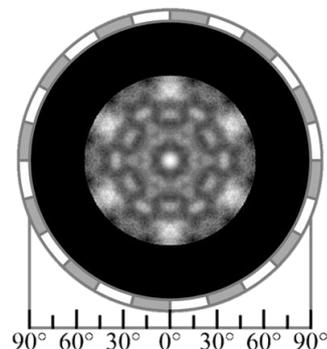


図 1 Mo 3d の光電子ホログラム

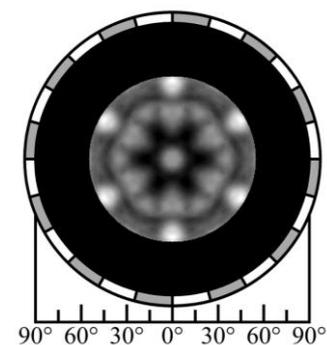


図 2 Na 2p の光電子ホログラム

参考文献

- 1) T. Matsushita: J. Phys. Soc. Jpn. 62, 17-25(2020)
- 2) T. Muro et al., Rev. Sci. Instrum. 88, 123106 (2017)

*E-mail: t-matusita@ms.naist.jp

Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2021

多数スペクトルデータを利用した共通ピーク構造の逆推定

○村上 諒^{1*}, 庄野 逸¹, 永田 賢二², 篠塚 寛志², 吉川 英樹²¹電気通信大学 大学院情報理工学研究科, ²物質材料研究機構

Inverse Estimation of Common Peak Structure from Multiple Spectral Data

○Ryo Murakami^{1*}, Hayaru Shouno¹, Kenji Nagata², Hiroshi Shinotsuka², Hideki Yoshikawa²¹The University of Electro-Communications, ²National Institute for Materials Science

X線光電子分光(XPS)において、図1に示すように同一の単相化合物試料を測定しても、計測装置の違いや実験条件により観測スペクトルの形状が異なる。そのため、XPSによる未知試料の同定にあたって、異種装置で得られたXPSデータベースにある単相化合物の観測スペクトルの参照方法が作業者に依存する問題がある。

本研究では、計測によって揺らいだ多数の観測スペクトルからその揺らぎを排除した共通ピーク構造を推定することを目的とする。図1に、本手法の概要図を示す。具体的には、データベースや文献などから単一の化合物に対する複数のスペクトルデータが与えられた状況において、それら全てのデータを統一的に表現することができる共通ピーク構造を求める手法を開発する。化合物由来の共通ピーク構造はVoigt関数の重ね合わせで表現し、計測に由来したスペクトルデータ間での揺らぎを表現するために、強度・位置・幅の三つのパラメータで補正することを考える。特に、バイズ情報量規準を用いることで、Voigt関数のパラメータだけでなく、ピークの個数もスペクトルデータから推定する。本発表では、開発した手法の有効性を検証するために、文献から取得したTiO₂のスペクトルデータ15個を対象に、TiO₂の共通ピーク構造を抽出した結果を紹介する。個別データそれぞれに文献[1]で開発されたピーク分離手法を適用した場合と結果を比較し、本手法で抽出された共通ピーク構造の抽出が安定していること、および抽出されたピーク構造が解釈しやすい形になることを示す。これにより、多相化合物から成る実試料のスペクトルデータから化合物同定や組成比を求める際にも、抽出された共通ピーク構造が重要な役割を果たすことを合わせて紹介する[2]。

文 献

- 1) H. Shinotsuka, R. Murakami, et al., *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **239** (2020) 146903.
- 2) R. Murakami et al., *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **245** (2020) 147003.

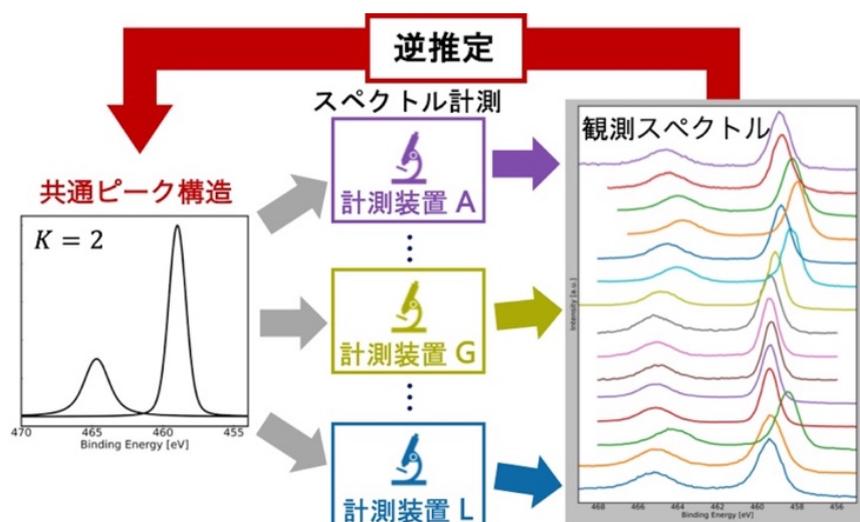


図1. 共通ピーク構造推定の概要図

*E-mail: shouno@ucc.ac.jp

Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2021

EM アルゴリズムを用いた RHEED 画像の機械学習自動解析

○吉成 朝子^{1,2}, 安藤 康伸³, 松村 太郎次郎³, 小嗣 真人¹, 永村 直佳^{1,2,4}¹東京理科大学大学院先進工学研究科, ²物質・材料研究機構, ³産業技術総合研究所, ⁴科学技術振興機構さきがけ

Machine learning analysis for RHEED images using EM algorithm

○Asako Yoshinari^{1,2}, Yasunobu Ando³, Tarojiro Matsumura³, Masato Kotsugi¹ and Naoka Nagamura^{1,2,4*}¹Tokyo University of Science, ²National Institute for Materials Science,³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ⁴Japan Science and Technology Agency PRESTO

RHEED(反射高速電子線回折)は結晶表面の構造判定や薄膜成長の評価に広く用いられている手法である。回折パターンには表面構造に関する豊富な情報が含まれる一方で、回折スポット強度の定量的な解釈は難しい。そのため多くの場合は、実験者の経験に基づいて一部の情報を使用し、強度振動による膜厚推定などの限られた情報を取得しているに過ぎない。近年では、薄膜成長過程の RHEED 画像に機械学習を活用し、成長様式の情報を抽出して薄膜成長のダイナミクスを議論する研究も試みられている^[1]。我々は Si(111)清浄表面の RHEED 画像において、画像輝度の 1 次元配列を用いた機械学習自動分類解析を行ってきた^[2]が、まだ特徴量の頑強さや次元の大きさに課題があった。そこで本研究では、Si 表面上に In を蒸着させる過程で得られた RHEED 画像において、輝度のヒストグラムに EM アルゴリズムを用いたピークフィッティング^[3]を行い、より頑強で低次元な特徴量を用いた機械学習解析を試みた。

実験では、超高真空下において、450°Cに通電加熱した Si(111)7×7 清浄表面上に分子線エピタキシー法で In の蒸着を行い、Si(111)4×1-In に至るまでに RHEED パターンの画像を 480 秒間で合計 375 枚得た。その間、In の蒸着量に伴う明確な回折パターンの変化が複数回観測された。得られた各画像の輝度に対するピクセル数をカウントし、ヒストグラムとした。

ヒストグラムの輝度 20-220 の範囲内にて、EM アルゴリズムを利用したピーク 2 本でのフィッティングによる解析^[3]を行った結果、低輝度側に強度の大きい Peak1 と、高輝度側に強度の小さい Peak2 が得られた(Fig.1(a))。そこで、各輝度に対するそれぞれのピークの強度割合を算出し、元の RHEED 画像に割り当てた(Fig.1(b,c))。Peak1 はバックグラウンド成分、Peak2 は回折パターンの主成分を示しており、画像におけるバックグラウンドの分離が示された。また、Peak2 についての分散値 σ を画像番号ごとに追うと、その挙動の変化点にて、予測された各表面超構造^[2]($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$, $\sqrt{31}\times\sqrt{31}$, 4×1 構造)の、In の最適蒸着時間の見積もりが行えた。また、視野のずれた画像における外れ値としての挙動が見られなかった。本手法によって、RHEED パターンにおけるバックグラウンド成分の分離のみならず、回折パターン主要成分を示すピークの分散 σ の変化点を追うことで、回折パターン全体を捉えた変化の情報が得られ、未知の系における相転移についても活用が期待される。また、画像輝度の一次元配列の活用よりも、外れ値に対して頑強であると示唆された。本研究は、*in-situ* 構造解析により試料の作製条件最適化を探索する観点でプロセスインフォマティクスへの応用も期待できる。

文献

- 1) Rama K. Vasudevan *et al.*, ACS NANO, **8**,10(2014)
- 2) 吉成 他, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 17p-P08-3
- 3) T.Matsumura *et al.*, STAM, **20**,1(2019)

*E-mail: NAGAMURA.Naoka@nims.go.jp

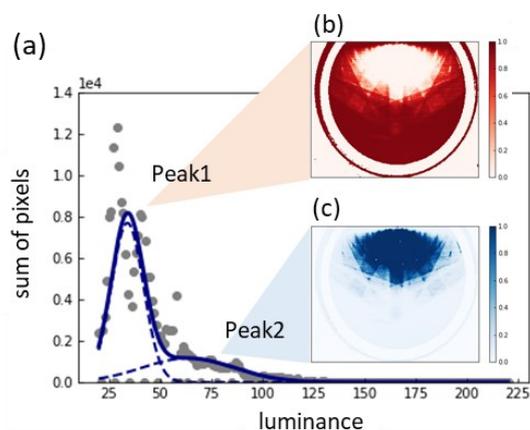


Fig.1. Fitting Result

(a) Example of Histogram with fitting curve

(b,c) Intensity mapping of Peak1 / 2

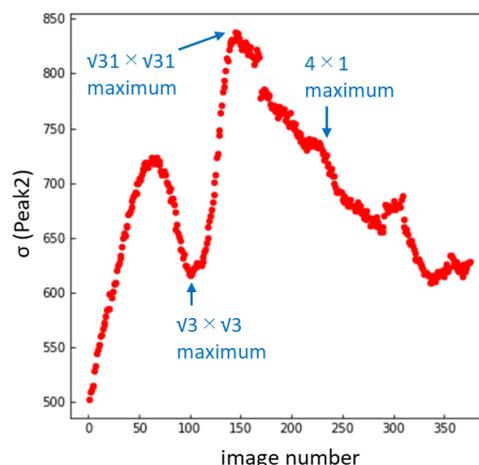


Fig.2. Dispersion of Peak2

Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2021

多軸制御 RHEED システムの構築と Si 立体構造表面の逆空間マップ評価法の開発

○清水智也¹, 井田有妃¹, 高橋駿太¹, Lilianny N. Pamasi¹, 服部 梓²,
田中秀和², 桃野浩樹³, 服部 賢^{1*}

¹奈良先端科学技術大学院大学, ²大阪大学産業科学研究所, ³米子工業高等専門学校

Development of reciprocal-space-map evaluation method for three-dimensional Si structure surface with construction of multi-axes controlled RHEED system

○Tomoya Shimizu¹, Yuki Ida¹, Shunta Takahashi¹, Lily N Pamasi¹, Azusa. N. Hattori²,
Hidekazu Tanaka², Hiroki Momono³, and Ken Hattori^{1*}

¹Nara Institute of Science and Technology, ²SANKEN Osaka University, ³Yonago College

MEMS や Fin FET 等の立体デバイスの性能向上のためには、外界との境界領域やキャリア輸送領域である立体構造の側壁表面やファセット表面の原子精度での制御が重要である。しかし、これら立体表面の評価、制御は困難であるため、研究は今まで進展していなかった。そこで、我々は立体加工、真空加熱処理、RHEED 観察の複合展開により Si 立体表面の評価に成功してきた 1)-5)。

我々は電子線入射方位角(φ)の異なる複数枚の RHEED パターンから、三次元逆空間マップ(3D-RSM)を作成する方位角スキャン RHEED 法を開発してきた 4)。この計測法では 3D-RSM 中に現れる、表面垂直方向の逆格子ロッドの観測が重要になる(図 1)。しかし、平坦基板表面では広範囲に明瞭なロッドが出現するものの、立体表面では特定範囲の方位角しか寄与しないため十分ではなかった。そこで、基板の方位角に加え、視射角(θ)回転も制御可能な多軸 RHEED システムを構築してきた 6)。

現在、測定装置・ソフトの改良を行い、3D-Si{111} 試料のファセット表面の逆格子ロッドの視覚化に成功している 7)。また、これまでのシステムでは、多軸制御のプログラム(LabVIEW)とパターン撮影用 CCD カメラのプログラムが別々であるため、煩雑で撮影条件設定に問題点があった。そこで、CCD カメラも制御する統一型プログラムを新たに開発した(図 2、図 3)。これにより、短時間で精度の良い 3D-Si 試料のファセット表面の測定に成功した。講演ではその詳細を報告する。

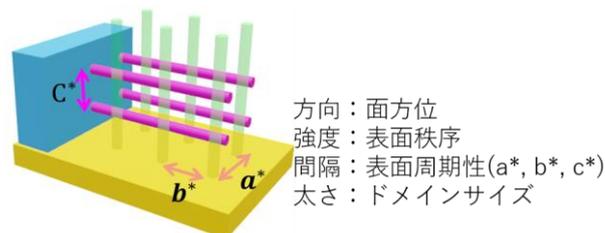


図 1. 立体表面の逆格子ロッド

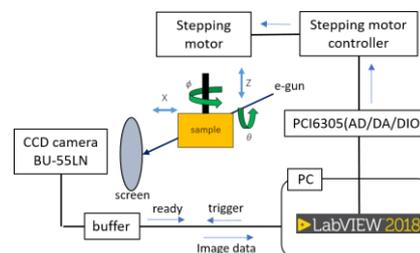


図 2. 新しい統一プログラム図

番号	Φ	Θ	Z	X	exp	rep	総和	TIME
1	125.002	0.000	198.500	12.500	1500.000	3.000	1	2021/08/03/17:34:13
2	125.299	0.000	198.500	12.500	1500.000	3.000	1	2021/08/03/17:34:21
3	125.596	0.000	198.500	12.500	1500.000	3.000	1	2021/08/03/17:34:30

図 3..測定結果シーケンス図

文 献

- [1] A. N. Hattori, K. Hattori, et al., Surf. Sci 644 (2016) 88.
- [2] A. N. Hattori, K. Hattori, et al., Appl. Phys. Express 9, (2016) 085501.
- [3] A.N.Hattori and. Hattori, DOI10.5772/intechopen.92860 (London, 2020), Chap. 6, pp. 91-111.
- [4] Irmikimov, **Takahashi**, et al., ACS Crystal Growth & Design (in press).
- [5] S. Takahashi et al., JPS annual meeting (2021) PSJ-2.
- [6] K. Hattori et al., Jpn. J. Appl. Phys. 51, (2012) 055801.
- [7] 高橋ら, 日本物理学会 2021 年春季大会 PSJ-2.

*E-mail: khattori@ms.naist.jp

立体表面造形技術を駆使した 3次元ナノ超構造・物性の先導的研究

○服部 梓^{1*}¹大阪大学産業科学研究所

Realization of three-dimensional architected surface creation and investigation of novel structural and physical properties

○Azusa N. Hattori^{1*}¹Osaka Univ., SANKEN

シリコン(Si)デバイスの3次元(3D)ナノ構造化が10 nm オーダーまで進行する中、立体構造化試料の精密な作製、及びその表面制御は、IOT デバイス科学技術の革新に直結する重要な課題である。当然であるが、3D 構造体上には、研磨されたウェハの一般的な2次元(2D)平面表面だけでなく、製造された構造の垂直な側面(side-surface)および傾斜のある斜面(facet-surface)という異なる配向を有する多くの表面がある。3D 化しても材料成長は常に表面で始まるので、側面、斜面は構造的および物理的特性の決定において重要な役割を果たす。さらに、2D 表面には存在しない面と面が交差する稜線や点が存在する。2D 表面構造は、原子レベルで作製、修飾、構造評価ができる技術が確立している。一方、3D 構造になると評価方法が限られ、精度や汎用性が極端に低くなる。3D ナノ構造体の構造観察に一般的に使用される走査電子顕微鏡(SEM)は、ナノメートル程度の分解能しかないため精密な評価はできず、原子分解能をもつ透過電子顕微鏡(TEM)は、観察用の試料準備が必要で、また正面から側面表面を観察することは原理的にできない。

そこで、空間的にデザインした観察用試料を作製し、装置の干渉を回避することで3次元表面である「側面」や「ファセット斜面」の原子レベルでの構造評価を実現してきた¹⁻⁴⁾。原子精度で構造制御した立体形状を持つSi 試料は、ドライ、ウェット異方性エッチングと超高真空(UHV)中での表面作製技術を組み合わせで作製した。Fig. 1 に最適化条件で3D パターン化し、(110) 平面上に{111}側面を持つ3D-Si のフラッシング後の反射高速電子線回折(RHEED)像と走査型トンネル顕微鏡(STM)像の一例を示す。立体配置を反映して、視斜角と方位角の観察条件に依存して、90度回転した1/4円状の{111}7×7 と半円状の(110)16×2 の重畳された

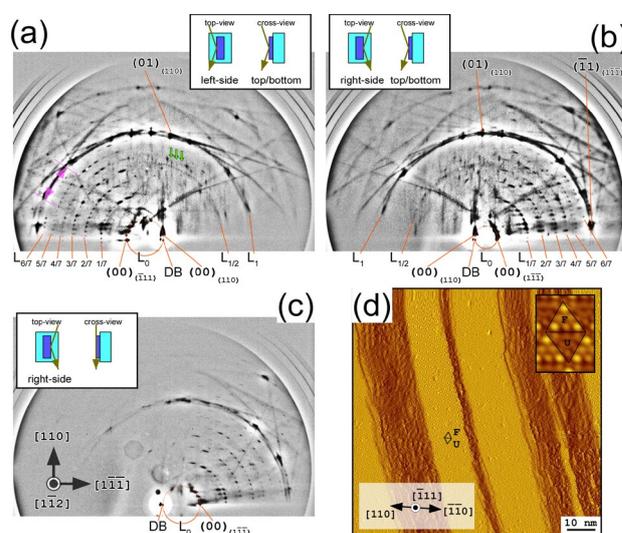


Fig. 1. Si{111}側面の(a)-(c)RHEED 像、(d) STM 像

RHEED パターンが観察され¹⁾、また直接原子構造もSTM で観察できている²⁾。乱れのない原子配列立体表面の実現により、立体接合面での電気伝導測定によりファセット端での位相不整合に由来する伝導電子の散乱に起因した抵抗上昇の発見³⁾、ピラミッド構造での4つのファセット面をまたぐ非対称的な磁気渦の発生に由来した磁性変調の観察⁴⁾を実現している。

発表では、原子精度でオーダーした表面を持つ自在な立体形状構造の実現に向けた取り組み、成果、今後の展望を示す。

文 献

- 1) A. N. Hattori *et al.*, Surf. Sci., (2016) **644** 86
- 2) H. Yang *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., (2017) **56** 111301
- 3) S. Takemoto *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., (2018) **57** 085503
- 4) A. Irmikimov *et al.*, ACS Crystal Growth & Design, (2021) **21** 946

*E-mail: a-hattori@sanken.osaka-u.ac.jp