

表界面・薄膜ナノ構造研究会における近未来の利用研究

Future Research on Nanostructured Surface, Interface, and Thin Films

表界面・薄膜ナノ構造研究会

Nanostructured Surface, Interface, and Thin Films Research Group

高橋 功, 関西学院大学理工学部

坂田修身, 高輝度光科学研究センター

Isao Takahashi, *Kwansei Gakuin University*Osami Sakata, *JASRI*

放射光は自然界の多くの現象や事物の原子・電子レベルでの空間的・時間的情報を提供してくれる強力な先端科学ツールである。これまで我々は薄膜材料を主とした新材料の創製と新機能ナノ構造の構築に関連した研究を行ってきたが、その際の原子レベルでの表面界面構造の解析手段として **SPring-8** の放射光 X 線を利用してきた。これまでの十年間の活動を踏まえて十年後の近未来における未解決のテーマ、挑戦すべき領域、研究会のありかた等について以下に記してみたい。

KEK-PF に代表される第二世代放射光以来の表面・界面構造における重要なテーマとしては半導体、金属、磁性体等の薄膜・表面・界面における様々な物理特性を利用したデバイス材料の薄膜・表面・界面構造と機能との関連の解明がある。このテーマは第三世代放射光に引きつがれ今後十年間も重要な課題となり続けることは論を待たない。むしろ次世代の高速・高密度の不揮発性メモリーとして注目されている **PRAM(Phase Change RAM)**、**FeRAM(Ferroelectric RAM)** 等は薄膜の原子レベルの構造制御のもとで機能が発現すると考えられるだけに、新機能材料薄膜の構造解析の重要性は高まっていくものと期待される。

原子レベルでの表面界面構造解析がある程度成熟した現段階で、今後どのような測定を放射光を用いて行う、あるいは行うことが期待されているのであろうか。様々な方向性が考えられるものの、いささか抽象的な表現を用いるならば空間軸と時間軸の双方でより刻みの細かい座標点上での構造解析を行う必要があるのではなかろうか。すなわち表面・界面構造の研究に際しても局所構造解析と時分割測定の双方に対する要求が格段に高まっていくものと予想される。局所構造解析のひとつの到達点としてサブミクロンサイズの X 線ビームを用いて 0.01mm^2 以下の面積の試料に対して数 **10nm** ステップでマッピング測定が行える実験環境の構築を提案したい。このような条件はデバイス材料の評価について重要な粒界や界面における構造の空間的変動の検出に際して有効であるのみならず、化学修飾されたグラフェン・シートの様に大面積の表面を得るのが難しい試料の研究にも必要である。サブミクロンビームの利用法のひとつとして曲率をもつ試料表面の表面構造の研究が考えられる。一例をあげるなら直径 **100 μm** 程度の繊維状試料の表面ラフネスや表面領域と繊維内部の分子配列の差異の検出、表面歪の異方性等は実用上も興味深いテーマとなり得るのではなかろうか。このような実験条件をクリアするには **100nm** 以下に集光可能な光学素子に加えて

高精度のゴニオメーターと試料のポジショニングのシステム等の整備を行わなければならない。放射光の分光・集光と位置決め安定性は、様々な走査型プローブ顕微鏡(SPM)やレーザー分光等と放射光との同時測定システムを構築する際にも、他の手法で同時に測定している表面領域を特定しながら放射光の測定を進めていけるという意味で極めて重要な条件となるであろう。

単色化に際して 100keV 程度のエネルギーの放射光を簡便に利用できるような高精度のモノクロメーターと回折計の実現は地味に響くかも知れぬが、ひとつの夢といえる。短波長の光と当研究会のメンバーが中心となって開発した逆格子ロッドの強度分布の迅速測定手法を組み合わせれば、質・量ともにこれまでとは比較にならぬほどの回折強度データの収集が可能となり、表面のサブ原子レベルでの精密構造解析の精度の飛躍的な向上が期待されるからである。[1,2]

時分割測定ではサブナノ秒の時間間隔での測定により現れるナノ構造のダイナミクスの解明がデバイス的高速アクセス化、寿命解析、動作の安定性の改善に対して有効である。圧電体や強誘電体薄膜の時間変化する外場印加時の構造変化が具体的なターゲットになるであろう。ps オーダーで計測器と放射光を同期させる技術に加えてサブ ns で時分割測定が可能な蛍光 X 線検出器を導入していく必要がある。蛇足めくが、これらの新機能材料の機能を再現性良く発現させて他の物性の同時測定も行いながらの放射光を用いた実験を実現するには、用途と測定法を絞り込んだ上で設計された試料温度可変の超高真空チャンバーの整備が前提となろう。

サブミクロンビームの利用法としてはスペックルを用いた表面構造の実空間における再構成や、X 線光子相関法による表面構造のダイナミクスの研究も想起される。これらの手法は薄膜分野での未解決の研究テーマのひとつであるアモルファス構造や結晶性の悪い薄膜・多結晶薄膜などの機能を構造・表面界面構造のレベルで明らかにする研究にも力を発揮するものと思われる。破断、破壊、接着、摩擦、吸着、表面融解といった日常的になじみの深い現象の殆どが、いわゆる“汚い”表面界面薄膜で生じており、多くの未解決問題を抱えている。このような長距離秩序を必ずしも有しない表面構造の研究では対相関関数の決定が重要である。逆空間の考え方に必ずしも習熟しているとは限らない広範囲の研究者層に研究成果をアピールするために、バルク構造の散漫散乱の研究等で盛んに進められているような様々な可視化の手法を導入することは優先順位の高い検討事項であろう。

これまで SPring-8 で行われてきた表界面ナノ構造に関連する研究課題は少なくはない。しかし今後も研究レベルと活性度の双方を高めながら研究会活動を継続していくためには、新しいメンバーの参入と有望な若手研究者の育成のための努力を欠かすわけにはいかない。ユーザーフレンドリーな装置・ソフト・システムを導入することで測定上でのハードルを下げるという面の努力・改良は新規参加者の多くが直面する困難を軽減させるには大いに効果があるのではなかろうか。

解析ソフトや可視化のためのソフト開発とも一部関連するが、現状では X 線の表面回折データを解析する際、動力学的理論、運動学的理論、それらの中間的理論…と複数の理論をデータの種類と質に応じて使い分けながら表面構造モデルの精密化を行っている。このこと自体は実用上特に拙いことではないとはいえ、分野の見通しの良

さという面では満足のいくものではないし、若手や異分野の研究者の参入を促すという点ではマイナスに作用しているはずである。表面回折現象を統一的に取り扱える理論を構築したいという夢はある意味贅沢な望みなのかも知れないが、世界の中でのわが国の表面界面薄膜研究グループのプレゼンスや影響力を高めるための有効な施策のひとつと考えられるのではなかろうか。

本研究会でカバーする研究分野における研究成果は放射光の特徴である輝度・干渉性、時間特性、波長選択性、偏光、*etc.*の優れた特性に多くを負っている。十年後にもこれらの特性のさらなる向上が要求されるであろうが、果たして可能であろうか。装置施設の更なる巨大化・特殊化が進行した果てには、アジア・オセアニア諸国との連携による国家間プロジェクトにより設計・開発・製作される超巨大放射光施設に研究分野ごとに競争的に参加・関与していくという体制になるのかもしれない。そのような事態になるのであれば、放射光を用いた表面界面構造科学の分野としても今後十年間に熾烈な競争に耐えうるだけの体力もつけていかねばならないということである。研究会としての風通しのよい健全な議論と情報収集、それらを通して選択と集中すべき項目の選定も含めた研究会の方向性一般に関するコンセンサスをいかに形成できるかが、言ってみれば研究会として至極当たり前の役割をきちんと果たしていくことができるかが今後益々問われていくように思われる。

[1] Observation of five-fold local symmetry in liquid lead, H. Reichert, O. Klein, H. Dosch, M. Denk, T. Lippmann, G. Reiter, *Nature* **408** (2000) 839.

[2] Giant Metal Compression at Liquid-Solid (Pb-Si, In-Si) Schottky Junctions, H. Reichert, M. Denk, J. Okasinski, V. Honkima, H. Dosch, *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007) 116101.