

Oral presentation | CS Code-sharing session : 【CS.5】 Code-sharing Session of 6.5 & 7.5

📅 Fri. Mar 14, 2025 9:00 AM - 11:30 AM JST | Fri. Mar 14, 2025 12:00 AM - 2:30 AM UTC 🏠 K507  
(Lecture Hall Bldg.)

## [14a-K507-1~9] CS.5 Code-sharing Session of 6.5 & 7.5

Kei Mitsuhashi(KOBELCO RESEARCH INSTITUTE, INC.), Masako Suzuki(群馬大)

9:00 AM - 9:15 AM JST | 12:00 AM - 12:15 AM UTC

[14a-K507-1]

Effect of interaction with substrate on Lo/Ld phase separation of lipid bilayers

○Koji Sumitomo<sup>1</sup>, Daiki Matsumoto<sup>1</sup>, Azusa Oshima<sup>2</sup>, Masumi Yamaguchi<sup>2</sup>, Akira Heya<sup>1</sup> (1.Univ. of Hyogo, 2.NTT BRL/BMC)

9:15 AM - 9:30 AM JST | 12:15 AM - 12:30 AM UTC

[14a-K507-2]

Surface Modification of Polymer Electrolyte Membranes by Atomic Hydrogen Annealing

○Akira Heya<sup>1</sup>, Itsuki Kitayama<sup>1</sup>, Koji Sumitomo<sup>1</sup> (1.Univ. of Hyogo)

9:30 AM - 9:45 AM JST | 12:30 AM - 12:45 AM UTC

[14a-K507-3]

Structure Analysis of Amyloid  $\beta$  Oligomers Linked at Two Positions

○Chikara Harada<sup>1</sup>, Atsuya Matsui<sup>1,2</sup>, Yumi Irie<sup>3</sup>, Ayumi Uchino<sup>3</sup>, Ayaka Chikugo<sup>3</sup>, Kotaro Fujii<sup>1</sup>, Katsuma Hosoi<sup>1</sup>, Akio Nakanishi<sup>1</sup>, Yusuke Kageyama<sup>1</sup>, Nobuyasu Naruse<sup>1</sup>, Chihiro Tsukano<sup>3</sup>, Kazuhiro Irie<sup>3,4</sup>, Yutaka Mera<sup>1</sup> (1.Shiga Univ. of Med. Sci., 2.General Care & Education Tennri Hosp., 3.Kyoto Univ., 4.Doshisya Univ.)

9:45 AM - 10:00 AM JST | 12:45 AM - 1:00 AM UTC

[14a-K507-4]

Scanning tunneling microscopy observation of initial oxidation process of segregated germanene on Ag thin film

○Daiki Katsube<sup>1,2</sup>, Junji Yuhara<sup>3</sup>, Yousoo Kim<sup>2</sup>, Seiya Suzuki<sup>4</sup> (1.JFCC, 2.RIKEN, 3.Nagoya Univ., 4.JAEA)

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[14a-K507-5]

Observation of topmost KBr (111) surface using low energy atom scattering spectroscopy

○Hiroaki Fukuta<sup>1</sup>, Goon Tan<sup>1</sup>, Kenji Umezawa<sup>1</sup>, Mamoru Yoshimoto<sup>2</sup> (1.Osaka Metropolitan Univ., 2.Institute of Science Tokyo)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

10:30 AM - 10:45 AM JST | 1:30 AM - 1:45 AM UTC

[14a-K507-6]

Cooperative oxidation reaction at dangling bond sites of Si(001) surface and interface

○Yuki Okabe<sup>1</sup>, Yasutaka Tsuda<sup>2</sup>, Hengyu Wen<sup>1</sup>, Akitaka Yoshigoe<sup>2</sup>, Yuji Takakuwa<sup>2,3</sup>, Shuichi Ogawa<sup>1</sup> (1.Nihon Univ., 2.JAEA, 3.Tohoku Univ.)

10:45 AM - 11:00 AM JST | 1:45 AM - 2:00 AM UTC

[14a-K507-7]

Initial oxidation rate deceleration and self-acceleration in Si(111) surface oxidation

Hengyu Wen<sup>1</sup>, Yasutaka Tsuda<sup>2</sup>, Yuki Okabe<sup>1</sup>, Akitaka Yoshigoe<sup>2</sup>, Yuji Takakuwa<sup>2,3</sup>, OShuichi Ogawa<sup>1</sup> (1.Nihon Univ., 2.JAEA, 3.Tohoku Univ.)

---

11:00 AM - 11:15 AM JST | 2:00 AM - 2:15 AM UTC

[14a-K507-8]

Reaction rate enhancement of SiO<sub>2</sub>/Si(001) interface oxidation by switching O<sub>2</sub> exposure ON-OFF

○Yasutaka Tsuda<sup>1</sup>, Akitaka Yoshigoe<sup>1</sup>, Yuki Okabe<sup>2</sup>, Hengyu Wen<sup>2</sup>, Shuichi Ogawa<sup>2</sup>, Yuji Takakuwa<sup>1,3</sup> (1.JAEA, 2.Nihon univ., 3.Tohoku univ.)

---

11:15 AM - 11:30 AM JST | 2:15 AM - 2:30 AM UTC

[14a-K507-9]

Bayesian Estimation for Analyzing Si 2p XPS of Oxidized Silicon Surfaces

○Hiroshi Shinotsuka<sup>1</sup>, Kenji Nagata<sup>1</sup>, Hideki Yoshikawa<sup>1</sup>, Shuichi Ogawa<sup>2</sup>, Akitaka Yoshigoe<sup>3</sup> (1.NIMS, 2.Nihon Univ., 3.JAEA)

---

## 脂質二分子膜と支持基板との間の相互作用

### Interactions between supported lipid bilayers and substrates

兵庫県大工<sup>1</sup>, NTT 物性研/BMC<sup>2</sup> <sup>○</sup>住友弘二<sup>1</sup>, 吉水寛人<sup>1</sup>, 大嶋梓<sup>2</sup>, 山口真澄<sup>2</sup>, 部家彰<sup>1</sup>

Univ. of Hyogo<sup>1</sup>, NTT Basic Research Labs/BMC<sup>2</sup>,

<sup>○</sup>Koji Sumitomo<sup>1</sup>, Hiroto Yoshimizu<sup>1</sup>, Azusa Oshima<sup>2</sup>, Masumi Yamaguchi<sup>2</sup>, Akira Heya<sup>1</sup>

E-mail: sumitomo@eng.u-hyogo.ac.jp

支持脂質二分子膜は生体膜モデルとして広く研究されている。その流動性は脂質二分子膜の機能を発現する上で不可欠であり、支持基板との間の相互作用は脂質二分子膜を利用したバイオデバイス作製において重要な要素となる。本研究では、脂質分子の側方拡散に影響を及ぼす支持基板との相互作用について議論する。

シリコン熱酸化膜表面上の脂質二分子膜の側方拡散を、光褪色後蛍光回復法 (FRAP) により評価した。Co<sup>2+</sup>イオンをバッファ溶液中に滴下することで蛍光ラベル (NBD) をクエンチし、脂質二分子膜の leaflet 毎の拡散係数を比較した (Fig. 1)。基板から遠い leaflet をクエンチすることにより、蛍光回復は遅くなった。回復曲線は、leaflet 毎に異なる拡散係数を持つモデルでよく一致した。クエンチによる各 leaflet の成分比より、基板に近い側の leaflet は基板からの相互作用が拡散障壁となり拡散係数が減少していることが分かった。基板表面を、正電荷を持つポリマー (poly-*L*-ornithine) でコートした場合、その正電荷が拡散障壁となり拡散係数が大きく減少する (Fig. 2)。基板に近い leaflet が大きな相互作用で拡散係数が大きく減少すると同時に、leaflet 間のカップリングにより、その影響が基板から遠い側の leaflet にも及んでいることが分かった。

基板の表面電荷が脂質二分子膜の側方拡散に及ぼす影響を FRAP 解析で評価した。各 leaflet の拡散係数を区別して評価することで、脂質二分子膜の特性に基板の及ぼす影響を明らかにした。脂質二分子膜を利用したバイオデバイス構築に重要な知見となる。

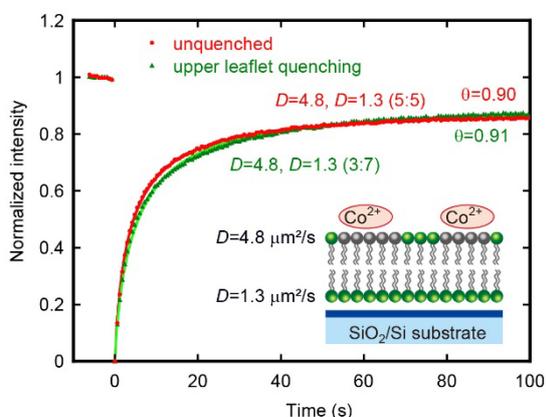


Fig. 1: Fluorescent recovery curves before and after quenching by Co<sup>2+</sup> ions, and compared with numerical calculation fittings.

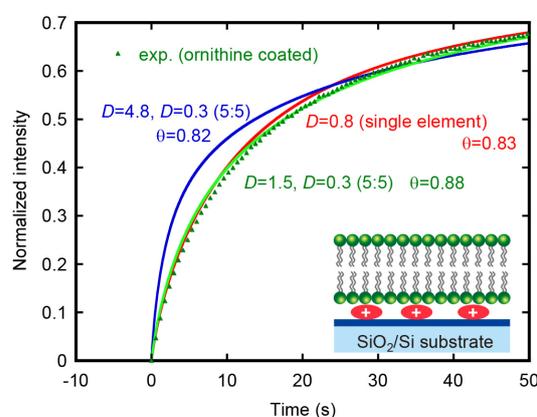


Fig. 2: Lateral diffusion of lipid bilayer supported on poly-*L*-ornithine coated surface.

# 原子状水素アニールによる高分子電解膜の表面改質

## Surface Modification of Polymer Electrolyte Membranes by Atomic Hydrogen Annealing

兵庫県立大工<sup>1</sup> ◦部家 彰<sup>1</sup>, 北山 育暉<sup>1</sup>, 住友 弘二<sup>1</sup>

Univ. of Hyogo<sup>1</sup> ◦Akira Heya<sup>1</sup>, Itsuki Kitayama<sup>1</sup>, Koji Sumitomo<sup>1</sup>

E-mail: heyaa@eng.u-hyogo.ac.jp

**【背景】** 固体高分子型燃料電池 (PEFC) 中の高分子電解膜は燃料電池の性能を決める重要な材料である。高分子電解膜としてよく用いられる Nafion は、テフロン骨格にスルホン酸基を末端につけた側鎖を持つパーフルオロスルホン酸高分子である。これまで我々は H<sub>2</sub> ガスを加熱金属触媒で分解することで生成した原子状水素による表面改質 (原子状水素アニール、AHA) を PTFE などのフッ素樹脂に行い、F 原子が優先的に除去されることが明らかにしている [1]。本研究では AHA による Nafion の表面改質について検討した。

**【実験方法】** Nafion 基板 (N117, 厚み 180 μm) を 20×20 mm<sup>2</sup> にカットし SUS 製のサンプルホルダに固定し、AHA 装置にセットした。原子状水素を生成するための金属触媒として 55×55 mm<sup>2</sup> サイズの W メッシュ (線径 0.03 mmφ、50 hole/inch) を用いた[1]。AHA 処理条件は、W メッシュ電圧 12 V、電流 30 A、H<sub>2</sub> 流量 150 sccm、ガス圧 30 Pa、W メッシュと試料の距離 70 mm、処理時間 t<sub>AHA</sub>=0, 300, 600, 1800 s とした。AHA 処理中の Nafion の表面温度を K 型熱電対で測定した。AHA による Nafion の表面変化は X 線光電子分光法 (XPS) (Al モノクロ、1486.6 eV、ビーム径 100 μm) とラマン分光法 (532 nm、ビーム径 1 μm) で評価した。

**【結果と考察】** C 1s, O 1s, F 1s, S 2p XPS ピーク面積から見積もった各原子濃度の AHA 処理時間依存性を Fig. 1 に示す。ここでは未処理 Nafion の原子濃度で規格化し、K 型熱電対で測定した試料表面温度を記載した。AHA 処理により O, S 原子濃度は減少し、C 原子濃度は若干増加した。また、F 原子濃度は変化しなかった。AHA 処理 0, 1800 s の Nafion 膜の C 1s, O 1s XPS スペクトルを Fig. 2 に示す。C 1s スペクトルでは AHA により側鎖の -CF- ピークが減少した。また、O 1s スペクトルからは AHA により -SO<sub>3</sub>- ピークが優先的に減少することが示された。このことから原子状水素は側鎖と優先的に反応し、側鎖の分解が起こる過程で表面改質が進行すると考えられる。また、ラマンスペクトルにおいて AHA による変化は見られず、AHA による改質層は 1 μm 以下であると考えられる。

**【結論】** AHA により Nafion 表面のパーフルオロ側鎖を減少させることができ、Nafion 膜全体 (例えば H<sup>+</sup> 移動) に影響を与えることなく、Nafion の表面改質が可能であることが示された。

[1] A. Heya et al., J. Photopolym. Sci. Tec., **36**, 253 (2023).

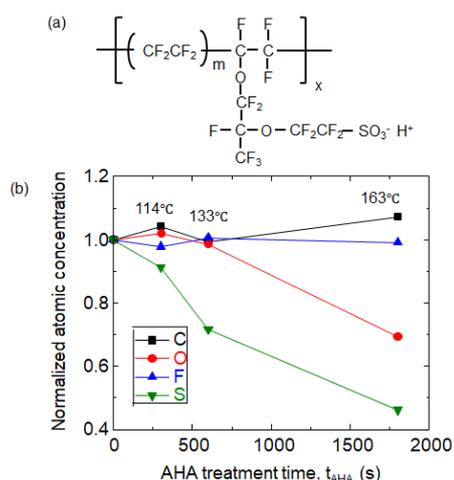


Fig. 1. (a) Molecular structure of Nafion. (b) AHA treatment time dependence of atomic concentration normalized by untreated Nafion.

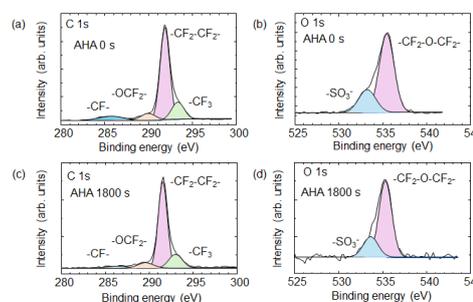


Fig. 2. C 1s and O 1s XPS spectra before and after AHA. (a) C 1s, AHA 0 s, (b) O 1s, AHA 0 s, (c) C 1s, AHA 1800 s, (d) O 1s, AHA 1800 s.

## 2 点架橋した A $\beta$ 2 量体を基準とした AFM によるオリゴマーの構造解析

### Structure Analysis of Amyloid $\beta$ Oligomers Linked at Two Positions

滋賀医大<sup>1</sup>, 天理よろづ相談所病院<sup>2</sup>, 京大院農<sup>3</sup>, 同志社大<sup>4</sup>

○原田 力<sup>1</sup>, 松井温哉<sup>1,2</sup>, 入江由美<sup>3</sup>, 内野歩美<sup>3</sup>, 筑後文馨<sup>3</sup>, 藤井洸太郎<sup>1</sup>,

細井克馬<sup>1</sup>, 中西章夫<sup>1</sup>, 景山裕介<sup>1</sup>, 成瀬延康<sup>1</sup>, 塚野千尋<sup>3</sup>, 入江一浩<sup>3,4</sup>, 目良 裕<sup>1</sup>

Shiga Univ. of Med. Sci.<sup>1</sup>, General Care & Education Tennri Hosp.<sup>2</sup>, Kyoto Univ.<sup>3</sup>, Doshisya Univ.<sup>4</sup>

○Chikara Harada<sup>1</sup>, Atsuya Matsui<sup>1,2</sup>, Yumi Irie<sup>3</sup>, Ayumi Uchino<sup>3</sup>, Ayaka Chikugo<sup>3</sup>, Kotaro Fujii<sup>1</sup>,

Katsuma Hosoi<sup>1</sup>, Akio Nakanishi<sup>1</sup>, Yusuke Kageyama<sup>1</sup>, Nobuyasu Naruse<sup>1</sup>, Chihiro Tsukano<sup>3</sup>,

Kazuhiro Irie<sup>3,4</sup>, Yutaka Mera<sup>1</sup>

E-mail: ds112277@g.shiga-med.ac.jp

アルツハイマー病 (AD) の発症メカニズムの解明は、医学における未解決の重要課題である。特にアミロイド  $\beta$  (A $\beta$ ) ペプチドの凝集体、とりわけそのオリゴマー (n 量体) の形態が AD 病理に深く関与していることが広く認識されつつある。A $\beta$  オリゴマーは数 nm から数十 nm 程度の大きさを持ち、その形態や種類が多様であるため、X 線回折法や分光法、走査電子顕微鏡法などの従来手法では十分な分類や詳細な形態情報を得ることは難しい。そのため、これまでは原子間力顕微鏡 (AFM) を用い、A $\beta$  オリゴマーの AFM 像におけるコントラストを基にサイズの推定や分類が試みられてきた。しかしながら、AFM プローブ先端の曲率半径が通常 5–6 nm であるため、基板上に存在する数 nm サイズのオリゴマーの水平方向の絶対的な寸法を議論するのは容易ではなかった。また、オリゴマーの多様性も相まって、AFM 画像のコントラストのみで A $\beta$  オリゴマーの正確なサイズや種類を特定し、その形態を議論することはきわめて困難であった。

本研究では、A $\beta$  の分子間共有結合形成により平行  $\beta$  シート構造を安定化させるとともに、凝集を抑制した各種 A $\beta$  ダイマーおよびトリマーを合成し、AFM 像の高さ情報が 0.01 nm の精度で議論可能である点に着目して、これらのオリゴマーの形態モデルの高さを元にオリゴマーの種類と形状を推定する方法の確立を目的とした。まず、A $\beta$  鎖の 2 箇所を 2 種類の共有結合 (C–C、S–S) で架橋した 3 種類の A $\beta$  ダイマーを合成した。これらのダイマーはいずれも溶解直後に球状粒子として観測された。測定時におけるこれら構造の配向のばらつきを考慮し、球状粒子のラインプロファイルから得られる高さのヒストグラムを定量的に解析した。その結果、各ダイマーは架橋位置の違いに関わらず、同様の高さ分布を示し、約 0.37 nm、約 0.51 nm の 2 つのピークが強度比 2:1 で観測された。主ピークは、分子間平行  $\beta$  シートを形成している A $\beta$  ダイマーの高さと解釈され、これを基準として各種オリゴマーの大きさと形状の議論が可能となった。例えば、合成したトリマーの一つから得たヒストグラムには約 0.50 nm のピークが観測され、分子間平行  $\beta$  シート構造の存在が示唆された。以上の結果は、AFM を用いて様々な A $\beta$  凝集体の大きさと形状を正確に分類するための方法論的枠組みを提示するだけでなく、AD 病理における A $\beta$  凝集の理解や凝集体の形態に基づく抗体医薬開発にも貢献するものである。

Ag 薄膜上偏析ゲルマネンの初期酸化過程の走査トンネル顕微鏡観察  
Scanning tunneling microscopy observation of initial oxidation process of  
segregated germanene on Ag thin film

(一財)ファインセラミックスセンター<sup>1</sup>, 理研<sup>2</sup>, 名大院工<sup>3</sup>, 原子力機構<sup>4</sup>

○勝部 大樹<sup>1,2</sup>, 柚原 淳司<sup>3</sup>, 金 有洙<sup>2</sup>, 鈴木 誠也<sup>4</sup>

JFCC<sup>1</sup>, RIKEN<sup>2</sup>, Nagoya Univ.<sup>3</sup>, JAEA<sup>4</sup>

°Daiki Katsube<sup>1,2</sup>, Junji Yuhara<sup>3</sup>, Yousoo Kim<sup>2</sup>, Seiya Suzuki<sup>4</sup>

E-mail: daiki\_katsube@jfcc.or.jp

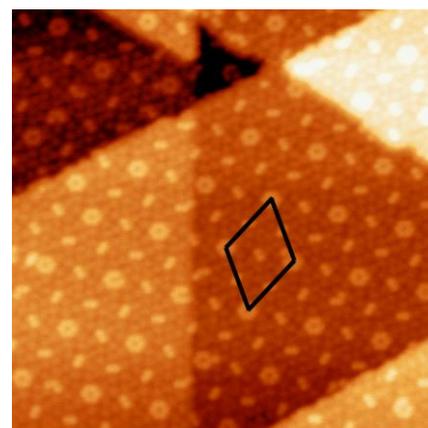
ゲルマネンは Ge で構成される単層ハニカム格子を持つ物質であり、そのトポロジカルな性質から次世代半導体材料として期待されている。近年、大面積で合成できる手法として、Ge(111)上へ Ag 薄膜を堆積させ、加熱を行うことによる合成法が報告されている[1]。このゲルマネンをデバイス応用するためには、デバイス作製プロセス中における酸化の影響を避けなければならない。これには、ゲルマネン中の酸化しやすいサイトを何らかの修飾基で保護することが必要となる。そのための第一歩として、本研究では、ゲルマネンの酸化により構造が乱れていく過程を理解するために、ゲルマネンに室温環境で酸素を曝露することによる構造の変化を走査トンネル顕微鏡 (STM) を用いて評価を行った。

試料には、Ge(111)基板上に電子ビーム蒸着法で堆積した Ag 薄膜(膜厚: ~ 150 nm)を使用した。試料を真空チャンバーに導入後、Ar<sup>+</sup>スパッタリング(エネルギー: 2 keV、イオン電流: 10 μA)と真空アニール(~ 500 °C、 $< 5.0 \times 10^{-8}$  Torr)を繰り返すことにより、偏析ゲルマネンを作製した。作製した試料は、低温 STM 室に搬送し、低温、超高真空(~ 7 K、 $< 1.0 \times 10^{-10}$  Torr)の環境で STM 観察を行った。ゲルマネンへの酸素曝露は、試料を室温に戻した後、任意の酸素雰囲気下で曝露を行った。

Figure には、Ag 上偏析ゲルマネンの STM 像を示す。これまでも報告してきた通り、Ag 薄膜上偏析ゲルマネンには、ダイマー状の輝点と六角形の輝点から構成される特徴的な超構造が見られる[2]。ここに室温で酸素を曝露していくと、特徴的な輝点上に優先的に酸素が吸着していく過程が観測された。そのため、この特徴的な輝点が酸化しやすいサイトと考えられる。

#### 参考文献

- [1] J. Yuhara, et al., ACS Nano **12**, 11632-11637 (2018).  
[2] 勝部 大樹 他、2023 年第 84 回応用物理学会秋季学術講演会、20a-A202-6 (2023).



6 nm  
Figure STM image of segregated germanene on the Ag thin film. Bias voltage and tunneling current are 1.0 V and 200 pA, respectively.

## 低速原子散乱分光法による KBr (111)表面の観察

### Observation of topmost KBr (111) surface using

### low energy atom scattering spectroscopy

大阪公立大<sup>1</sup>, 東京科学大<sup>2</sup> ○福田 浩昭<sup>1</sup>、譚ゴオン<sup>1</sup>、梅澤 憲司<sup>1</sup>、吉本 護<sup>2</sup>

Osaka Metropolitan Univ.<sup>1</sup>, Institute of Science Tokyo<sup>2</sup>, ○Hiroaki Fukuta<sup>1</sup>, Goon Tan<sup>1</sup>,

Kenji Umezawa<sup>1</sup>, Mamoru Yoshimoto<sup>2</sup>

E-mail: fukuta@omu.ac.jp

#### 1. はじめに

絶縁体においては、これまで表面状態の研究で用いられてきた低速イオン散乱法、電子線回折法、オージェ電子分光法や各種の電子顕微鏡では入射イオンによる帯電(チャージアップ)効果のために分析は困難であった。我々は入射プローブとして低速な原子を用いた飛行時間型原子散乱表面分析装置を開発し、それまで困難であった絶縁体表面の分析を行ってきた[1]。

本講演では、絶縁体である KBr (111)の表面構造について報告する。KBr 単結晶は Rock salt 構造であり、その格子定数は  $6.6\text{\AA}$  である。Losch らによる KBr (100) の表面構造の先行研究では、表面緩和により  $0.2\text{\AA}$  の rumpling が起こっていることが報告されている[2]。また、他グループによる AFM を用いた KBr(100) と (111) 表面の先行研究もある[3]。本研究では低速原子散乱分光法を用いて KBr (111)の表面構造について調べた。試料は、 $10\text{mm}\times 10\text{mm}\times t\ 1\text{mm}$  サイズの KBr (111)単結晶であった。入射粒子は、 $100\text{kHz}$  にパルス化された  $3\text{keV-}^4\text{He}^0$  を用いた。実験は、入射粒子を試料に衝突させ、 $180^\circ$  後方散乱された粒子を MCP で検出し行った。得られたスペクトルは、飛行時間分解型である。

#### 2. 結果とまとめ

Fig. 1 に入射角の全方位スキャンの実施により得られた Br 原子からの信号強度を示した極点図を示す。KBr(111)の表面構造は3回対称性を持っていることが分かった。実験とシミュレーションを用いて、表面が Br-Top であるか K-Top であるかを検討した。詳細については講演で述べる。

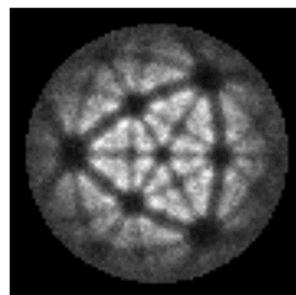


Fig. 1. KBr(111)の Br 原子からの信号強度の全方スキャン図(極点図)

研究の実施にあたり株式会社パスカル TOFLAS-3000 を使用させて頂いたこと及び長澤裕樹氏に感謝致します。

[1]福田浩昭、譚ゴオン、梅澤憲司：応用物理, 91, 694 (2022)

[2] A. Losch, and H. Niehus: Surface Science, 420, 148 (1999)

[3] H. P. Mungse, S. Okudaira, M. Yamauchi, T. Ichii, T. Utsunomiya, S. Maruyama, Y. Matsumoto, and H. Sugimura: Japanese Journal of Applied Physics, 61, SL1009 (2022)

## Si(001)表面と界面の未結合手における協奏酸化反応

## Cooperative oxidation reaction at dangling bond sites of Si(001) surface and interface

日本大学<sup>1</sup>, 日本原子力研究開発機構<sup>2</sup>, 東北大学<sup>3</sup> ○(B) 岡部 優希<sup>1</sup>, 津田 泰孝<sup>2</sup>,(B) Hengyu Wen<sup>1</sup>, 吉越 章隆<sup>2</sup>, 高桑 雄二<sup>2,3</sup>, 小川 修一<sup>1</sup>Nihon Univ.<sup>1</sup>, JAEA<sup>2</sup>, Tohoku Univ.<sup>3</sup> °Yuki Okabe<sup>1</sup>, Yasutaka Tsuda<sup>2</sup>, Hengyu Wen<sup>1</sup>,Akitaka Yoshigoe<sup>2</sup>, Yuji Takakuwa<sup>2,3</sup>, Shuichi Ogawa<sup>1</sup>

E-mail: ciyu21069@g.nihon-u.ac.jp

SiO<sub>2</sub>/Si 界面での O<sub>2</sub> 解離吸着サイトが酸化誘起空孔の未結合手であり、Si 基板からの多数・少数キャリア捕獲により SiO<sub>2</sub> 成長するモデルが提案された[1-3]。酸化により空孔は消失するが新たな点欠陥発生が繰り返され、一段階酸化反応経路 (Loop A) と二段階酸化反応経路 (Loop B) が同時進行し、両者は少数キャリア捕獲の頻度に依存して交差している (Loops A/B モデル) [3]。他方、Si(001)表面酸化ではダイマー未結合手で進行する (ラングミュア型吸着) と考えられているが、酸化膜被覆率に依存して点欠陥発生することが知られている[1]。そのため本研究では Si(001)表面酸化過程を XPS でリアルタイム観察し、ダイマーと空孔での酸化反応経路の競合過程を解明する。

リアルタイム XPS 観察は SPring-8/BL23SU で行い、Si 2p と O 1s 光電子スペクトルを 65 s と 24 s で交互に観察した。酸化膜厚  $X_O$  は式(1)を用いて急速な表面酸化だけでなく、~1000 s 以降の界面酸化もフィットできた (図 1)。

$$X_O = A_A(1 - e^{-k_A t}) + A_B(1 - e^{-k_B t}) \quad (1)$$

300°Cに比べて 550°Cでは Loop A が増加し、Loop B が減少している。 $A_A/(A_A + A_B)$ の顕著な温度依存は、高温で少数キャリア密度が増加するので Loop A が優先的に進行し、Loop B への分岐が抑制されるとして説明できる。ダイマー未結合手の酸化で発生した空孔は Loop A に寄与していることが、歪み Si 原子/ダイマーSi 原子/バンドベンディングの挙動から明らかにされた。Loop A では *ins/ins* と *tri/tri*、Loop B では *tri/tri* と *tri/ad* のペアが O<sub>2</sub> 解離吸着で生じることが観察され、酸素吸着配向からも Loop A と Loop B を識別できることが分かった。

[1] S. Ogawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SM0801 (2020). [2] Y. Tsuda *et al.*, J. Chem. Phys. **157**, 234705 (2022). [3] Y. Tsuda *et al.*, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **21**, 30 (2023).

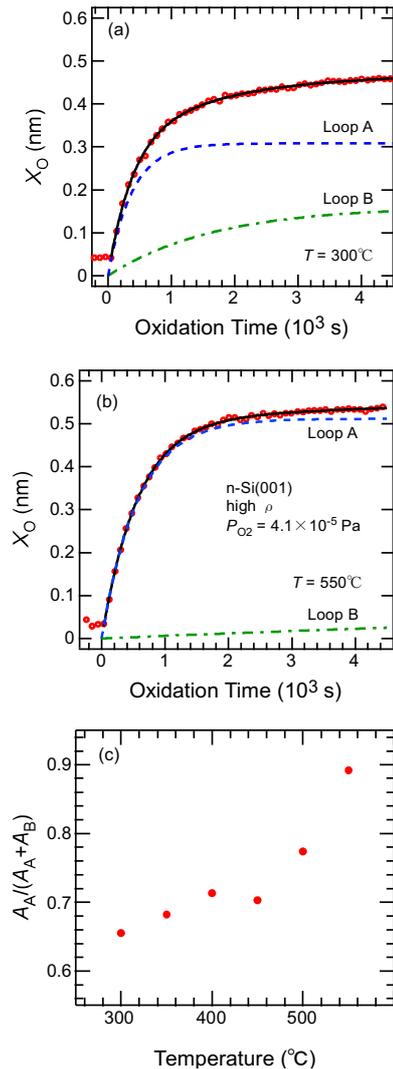


図 1.  $X_O$  の Loop A/B モデル解析 : (a) 300°C, (b) 550°C, (c) Loops A/B の分岐比

## Si (111) 表面酸化における初期減速と自己加速

## Initial oxidation rate deceleration and self-acceleration in Si(111) surface oxidation

日本大学<sup>1</sup>, 日本原子力研究開発機構<sup>2</sup>, 東北大学<sup>3</sup> (B) Hengyu Wen<sup>1</sup>, 津田 泰孝<sup>2</sup>,(B) 岡部 優希<sup>1</sup>, 吉越 章隆<sup>2</sup>, 高桑 雄二<sup>2,3</sup>, °小川 修一<sup>1</sup>Nihon Univ.<sup>1</sup>, JAEA<sup>2</sup>, Tohoku Univ.<sup>3</sup> Hengyu Wen<sup>1</sup>, Yasutaka Tsuda<sup>2</sup>, Yuki Okabe<sup>1</sup>,Akitaka Yoshigoe<sup>2</sup>, Yuji Takakuwa<sup>2,3</sup>, °Shuichi Ogawa<sup>1</sup>

E-mail: ogawa.shuichi@nihon-u.ac.jp

次世代 MOSFET のゲートスタック形成で不可欠な Si ドライ酸化プロセスによる酸化速度 ( $dX_0/dt$ ) は、2~1000 nm の広範囲にわたり式(1)で記述できる[1]。

$$\frac{dX_0}{dt} = C_1 \exp\left(-\frac{X_0}{L_1}\right) + C_2 \exp\left(-\frac{X_0}{L_2}\right) + \frac{B}{2X_0 + A} \quad (1)$$

第一項と第二項は初期増速酸化、第三項は Linear-Parabolic 成長によるものである。約 30 nm 以下では第一項と第二項は消失し、第三項のみが顕在する。そのため膜厚  $X_0$  の増加に従って  $dX_0/dt$  は急減速するはずが、逆に自己加速しているとも見られる。このような急減速/自己加速は Si(111)表面の室温酸化でも観察された[2]。本研究では Si(111)表面酸化のリアルタイム XPS 観察から、 $X_0$ 、 $dX_0/dt$ 、Si 酸化状態、歪み Si 原子、バンドベンディングの変化に加え、酸素吸着配向の情報から急減速/自己加速の反応機構を検討する。

リアルタイム XPS 観察は BL23SU@SPring-8 に設置された表面化学反応解析装置を用いて行なった。 $X_0$  は式(2)を用いて解析した (図 1(a)) [3-5]。

$$X_0 = A_A(1 - e^{-k_A t}) + A_B(1 - e^{-k_B t}) + \frac{1}{2} \left[ -A + \sqrt{A^2 + 4B(t + \tau)} \right] \quad (2)$$

第一項は空孔での一段階酸化反応 (Loop A)、第二項は二段階酸化反応 (Loop B) によるもので空孔密度について一次反応である[3]。これに対して第三項 (Linear-Parabolic growth) は薄膜領域で  $X_0 \cong \frac{B}{A}t$  で近似できるように 0 次反応である。図 1(b)から分かるように 5000 秒付近で急減速から自己加速に移行する。550°Cでも自己加速酸化は見られるものの、Loop B とともに寄与は減少し、逆に Loop A の寄与が増加した。自己加速酸化領域で酸素吸着配向の *ins* が減少し *tri/ad* が増加することから、Si 酸化による体積膨張と吸着熱が一次反応では点欠陥発生、0 次反応では Si-O 結合切断をもたらす、そのとき出現する未結合手での O<sub>2</sub> 解離吸着モデルを提案する。

[1] H.M. Massoud *et al.*, J. Electrochem. Soc. **132**, 2685 (1985). [2] J. Tang *et al.*, Surf. Interface Anal. **46**, 1147 (2014). [3] S. Ogawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **59**, SM0801 (2020). [4] Y. Tsuda *et al.*, J. Chem. Phys. **157**, 234705 (2022). [5] Y. Tsuda *et al.*, e-J. Surf. Sci. Nanotech. **21**, 30 (2023).

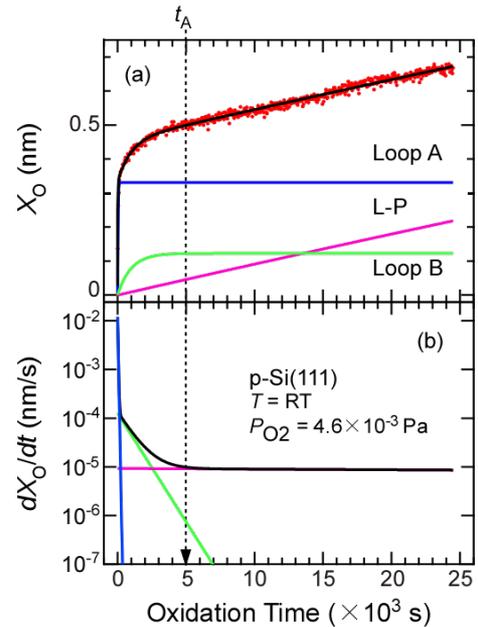


図 1 (a)  $X_0$  の Loops A/B モデルと Linear-parabolic モデルを組み合わせた解析と (b) 酸化速度の比較

# O<sub>2</sub> ON-OFF 切り替えによる SiO<sub>2</sub>/n-Si(001) 界面酸化反応の加速

## Reaction rate enhancement of SiO<sub>2</sub>/n-Si(001) interface oxidation by switching O<sub>2</sub> exposure ON-OFF

原子力機構<sup>1</sup>, 日本大学<sup>2</sup>, 東北大学<sup>3</sup>

○津田泰孝<sup>1</sup>, 吉越章隆<sup>1</sup>, 岡部優希<sup>2</sup>, Hengyu Wen<sup>2</sup>, 小川修一<sup>2</sup>, 高桑雄二<sup>1,3</sup>

JAEA<sup>1</sup>, Nihon univ.<sup>2</sup>, Tohoku univ.<sup>3</sup>

Yasutaka Tsuda<sup>1</sup>, Akitaka Yoshigoe<sup>1</sup>, Yuki Okabe<sup>2</sup>, Hengyu Wen<sup>2</sup>,  
Shuichi Ogawa<sup>2</sup> and Yuji Takakuwa<sup>1,3</sup>

E-mail: [tsuda.yasutaka@jaea.go.jp](mailto:tsuda.yasutaka@jaea.go.jp)

Si ドライ酸化における SiO<sub>2</sub>/Si(001) 界面での O<sub>2</sub> の反応は、界面欠陥 V<sup>0</sup> にバルク Si から多数キャリアが捕獲され活性化 (V<sup>+</sup>, V<sup>-</sup>) された後、分子状吸着、過剰少数キャリアの捕獲を経て O<sub>2</sub> が解離することで進行する[1-3]。この時、O<sub>2</sub> 解離にともなう局所歪みの発生が新たな V<sup>0</sup> 生成を誘起し、一段階(Loop A: 高速)あるいは二段階(Loop B: 低速)の O<sub>2</sub> 解離をともなう二種類の反応ループが界面で進行する。本研究では、O<sub>2</sub> OFF-ON を繰り返した際に膜厚成長速度が増加する特異な現象を上記のモデルに基づいて考察した。

温度 300°C の n-Si(001) 清浄表面を、圧力  $4 \times 10^{-5}$  Pa の O<sub>2</sub> に 2 h 曝したのち、図 1 上部に示したように 30 min ずつ O<sub>2</sub> OFF-ON を繰り返した。一連の操作中にリアルタイムで O 1s、Si 2p 光電子スペクトルを取得した。図 1(b,c) に示した Si 2p ピーク成分から、SiO<sub>2</sub> 膜厚 X<sub>0</sub> の時間変化を求め、微分することで図 1(a) に示した膜厚成長速度 dX<sub>0</sub>/dt を得た。O<sub>2</sub> ON により、O<sub>2</sub> OFF 直前と比べて dX<sub>0</sub>/dt が増加した。図 1(c) において、O<sub>2</sub> OFF の期間に界面歪み Si (Si<sup>α</sup>, Si<sup>β</sup>) が徐々に減少しており、これは V<sup>0</sup> 生成による歪みの解消によるものと考えられる。また、それにともない V<sup>-</sup> も増加するため、図 1(d) に示すように、V<sup>-</sup> の負電荷によりバンドベンディングが大きくなる。よって、O<sub>2</sub> OFF 中に増加した V<sup>-</sup> が O<sub>2</sub> ON により急激に消費され、dX<sub>0</sub>/dt の加速が起こったと考えられる。O<sub>2</sub> ON 時の歪み Si の増加 (図 1(c)) およびバンドベンディングの急峻な減少 (図 1(d)) からこのことが読み取れる。また、X<sub>0</sub> の変化をピークフィッティングにより Loop A/B の寄与と分離すると、O<sub>2</sub> OFF 直前は Loop B のみで反応が進行していたが、O<sub>2</sub> ON 直後には Loop A の寄与も現れた。Loop A から B への分岐比は Loop B 中の欠陥での分子状吸着状態 V-O<sub>2</sub>(chem) の量に比例するため、O<sub>2</sub> ON 直後の V-O<sub>2</sub>(chem) の増加により Loop B による反応過程の一部が分岐し、Loop A で加速過程が進行する。

[1] S. Ogawa et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SM0801 (2020). [2] Y. Tsuda et al., *J. Chem. Phys.* **157**, 234705 (2022). [3] Y. Tsuda et al., *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* **21**, 30 (2023).

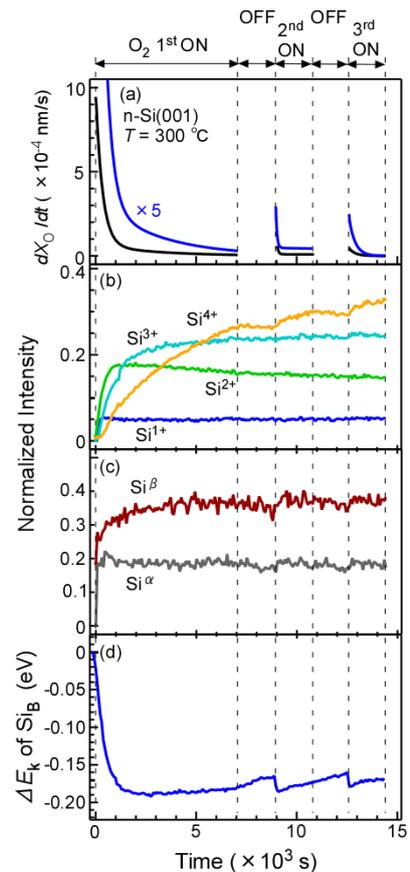


図 1 n-Si(001)における(a)膜厚 X<sub>0</sub> の成長速度、(b)酸化状態、(c)Si<sup>α</sup> と Si<sup>β</sup>、(d)バンドベンディングの時間変化。

## ベイズ推定による酸化シリコン表面の Si 2p XPS 解析

### Bayesian Estimation for Analyzing Si 2p XPS of Oxidized Silicon Surfaces

NIMS<sup>1</sup>, 日大<sup>2</sup>, 原子力機構<sup>3</sup> ○篠塚 寛志<sup>1</sup>, 永田 賢二<sup>1</sup>, 吉川 英樹<sup>1</sup>, 小川 修一<sup>2</sup>, 吉越 章隆<sup>3</sup>

NIMS<sup>1</sup>, Nihon Univ.<sup>2</sup>, JAEA<sup>3</sup>, °Hiroshi Shinotsuka<sup>1</sup>, Kenji Nagata<sup>1</sup>, Hideki Yoshikawa<sup>1</sup>, Shuichi Ogawa<sup>2</sup>, Akitaka Yoshigoe<sup>3</sup>

E-mail: SHINOTSUKA.Hiroshi@nims.go.jp

X線光電子分光法 (XPS) は、物質表面の化学状態に関する情報を提供する強力な計測手法として広く用いられている。酸化シリコンはゲート絶縁膜として重要な役割を果たしており、その特性を正確に理解することがデバイス性能や信頼性向上において不可欠である。放射光を用いた高分解能の Si2p 光電子スペクトルの測定および解析により、シリコンの初期酸化過程において Si(001)の表面二量体の存在や酸化物/Si 界面の酸化誘起歪みに起因する成分の存在が強く示唆されている[1]。しかしながらその評価には、光電子スペクトルの信号が出現する場所などの事前情報が必要で、その事前情報の場所からのズレやピークの重なりを分離して議論するためには膨大な時間と解析経験が必要であった。

本研究ではシリコンの酸化プロセス中にリアルタイムで計測した Si2p スペクトルを数理学におけるベイズ推定の手法で解析し、その結果、熟練者と同等の解析を自動化することに成功した[2]。解析の結果は、初期値や設定条件に強く依存する従来手法とは異なり、局所解に陥るリスクを軽減し、グローバルな最適解を探索することが可能である。また、スペクトルに含まれるピークの数やデータを直接推定することができ、さらに各ピークの位置や形状も事後分布として得ることができる。これにより、図 1 のようにシリコンの酸化の時系列に沿って各ピーク成分の変化を明瞭に観察することができた。

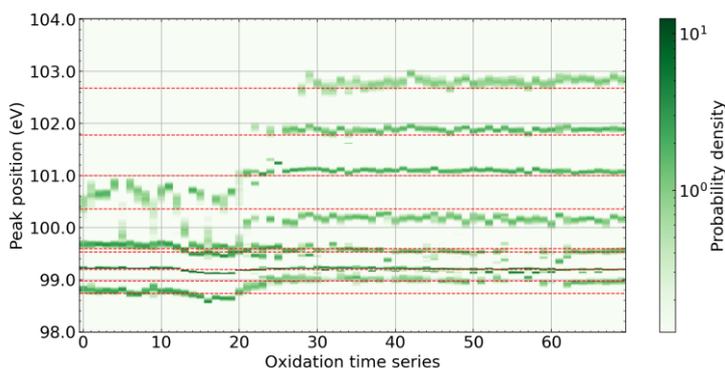


図 1. シリコン酸化の時系列に対するピーク位置の事後確率分布。赤い点線は代表的なピーク位置[1]。

[1] S. Ogawa *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 52 (2013) 110128.

[2] H. Shinotsuka *et al.*, Applied Surface Science 685 (2024) 162001.