

「ナノ界面技術の基盤構築」
平成18年度採択研究代表者

尾嶋 正治

東京大学大学院 工学系研究科・教授

超高輝度放射光機能界面解析・制御ステーション

§ 1. 研究実施の概要

SPring-8 長尺アンジュレータからの超高輝度コヒーレント軟 X 線放射光を用いて、半導体ナノデバイス、磁性ナノデバイス、有機薄膜デバイスにおける界面構造を三次元的に解明すること、そして得られた結果に基づいて界面電子構造の制御・設計を行うことを目的として研究を実施した。これまでの結果として、

- 1) 軟 X 線放射光ナノビームに対して試料を走査する「3次元ナノ ESCA 装置」の開発を行い、SPring8 の東京大学アウトステーションに設置し空間分解能 100 nm を達成した。また、Si-LSI におけるゲート部の光電子検出角度依存性を測定し、最大エントロピー解析による電子状態深さ方向分析、すなわち 3 次元解析が可能であることを実証した。
- 2) 高輝度放射光を用いた「投影型光電子顕微鏡 PEEM システム」によって半導体界面、金属/光触媒界面などの電子状態イメージングを行い、円偏光切り替えによって埋もれた磁性ナノ構造中の磁区構造動的变化を観測し、磁性デバイス開発の指針を得た。また、抵抗変化不揮発メモリー ReRAM のメカニズムを解明した。
- 3) ミクロンビーム軟 X 線を用いた発光分光法により深く埋もれたデバイス界面の微小部電子状態を調べ、有機物・高分子薄膜構造、絶縁体/半導体界面層を解明すると同時に、液体-液体界面の電子状態を解明する超高分解能発光分光装置(分解能 1 万)の開発を進めた。
- 4) 長尺アンジュレータからのコヒーレント軟 X 線を用いて埋もれた界面磁性層の磁区構造動的イメージングを可能にする装置を設計した。

これにより、デバイス構造の電子・化学・磁気構造を多角的に研究する装置が整備され、デバイス特性向上に直結する機能界面解析・制御ステーション構築に向けて進んでいる。

§ 2. 研究実施体制

(1)「3D ナノ ESCA」グループ

①研究分担グループ長：尾嶋 正治（東京大学大学院、教授）

②研究項目

超高輝度軟X線放射光のナノビームを用いた角度一括取り込み光電子分光システム(3次元ナノ ESCA)を開発し、試料を走査することで深さ方向分布を一挙に求め、元素分布、化学状態分布の 3 次元マッピングを可能にする。装置は高エネルギー加速器研究機構 PhotonFactory の BL-16A において組み上げ・調整を行い、平成 21 年 9 月に SPring-8 に移設・設置した。SPring-8 の東京大学アウトステーション BL07LSU は平成 21 年 10 月に完成・運用が開始され、今後本ビームラインにおいて、Fresnel zone plate (FZP)を用いた数 10 nm ϕ のナノビームを用いることにより、試料走査を行いながら角度分解光電子分光を行い、3 次元電子状態マッピングを実現することとなる。

本装置を、強相関係酸化物デバイス、LSI 用 high-k ゲート絶縁膜、InGaN 青色発光ダイオード(LED)、燃料電池用触媒などにおける相分離現象に適用し、相分離メカニズムを解明するとともに、その制御手法を開発して素子特性向上に資する。また、強磁性体である LSMO 薄膜でサンドイッチした SrTiO₃ 構造の界面構造、および金属/ペロブスカイト Mn 酸化物 (Pr_{1-x}Ca_xMnO₃), Ni 酸化物(NiO)構造、金属/有機物構造を用いた超巨大抵抗変化デバイス構造に適用し、界面電子構造を解明する。さらに、放射光マイクロビーム励起抵抗変化測定法を開発し、この電極構造にパルス電界を印加させて、共鳴光電子分光/X線吸収分光複合解析法と放射光サブマイクロビーム励起抵抗変化測定法の組み合わせにより、界面で起こっている現象の解明と界面反応制御層の挿入など新構造の提案を行う。

(2)「ナノビーム」グループ

①研究分担グループ長：雨宮 健太（高エネルギー加速器研究機構、准教授）

②研究項目

1. ゾーンプレートを用いたナノビーム(50 nm ϕ)の開発

長尺アンジュレータからの超高輝度軟X線放射光を、直径 200 μ m、最外殻リング幅 35 nm のゾーンプレートによって 50 nm 以下にまで集光する。これは、ナノビームによって得られる 2 次元方向の分解能と広角度一括取り込みによる深さ分解光電子分光とを組み合わせることで 3 次元ナノ ESCA を実現するためのものである。

2. K-B ミラーを用いたサブミクロンビームの開発

焦点距離が波長に依存しないというK-Bミラーの特長を活かして、アンジュレータからの軟X線放射光をサブミクロンに集光する。これは、角度分解した電子収量法による深さ分解X線吸収分光と組み合わせることによって、3次元XAFS法を実現するためのものである。XAFSは波長を変えることが必須であるため、3次元ナノ ESCA とは相補的な関係にある。

(3)「PEEM」グループ

①研究分担グループ長： 木下 豊彦（財団法人高輝度光科学研究センター、グループリーダー）

②研究項目

すでに開発済みの投影型の放射光光電子顕微鏡 PEEM を用いて、軟 X 線アンジュレータビームラインにおいて次世代 LSI 用ゲート絶縁膜、磁性ナノ構造薄膜（埋もれた構造）、電界誘起巨大抵抗変化試料などを解析する。空間分解能数 10 nm、video rate 観察という優れた特長を生かして、界面反応の動的観察と kinetics 解明、磁区構造の動的観察、パルス電界誘起金属相領域の時間変化観察などを行い、これらの結果に基づき界面特性制御方法の提案を行う。

(4)「マイクロ発光」グループ

①研究分担グループ長： 辛 埴（東京大学物性研究所、教授）

②研究項目

SPring-8 の軟 X 線ビームラインにおいて軟 X 線発光分光装置を利用し、さまざまな固体界面、固液界面や液液界面の電子状態解析を行う。マイクロビーム軟 X 線を利用し、デバイス界面構造において機能を果たす部分に焦点を絞ったピンポイント電子状態解析を行い、デバイス特性支配要因を明らかにする。同じ手法を水-固体界面や水-溶液界面に適用することができる。これらの界面は触媒反応や化学反応の基礎をなす重要な研究領域でありながら、一部のレーザー分光や AFM などによる構造観察のアプローチのみで、直接その電子状態を観測する手法は確立していない。これらに発光分光法を適用することで、界面の織り成す種々の未解明の化学過程を明らかにする。

(5)「コヒーレント分光」グループ

①研究分担グループ長： 小野 寛太（高エネルギー加速器研究機構、准教授）

②研究項目

高輝度アウトステーションからのコヒーレント軟 X 線を利用した高空間分解能での新しい分光イメージング技術を開発するため、平成 19, 20 年度は高輝度軟 X 線を利用することが可能なドイツ・ベルリンの放射光施設 BESSY において、共同研究者の Stefan Eisebitt 博士とともに軟 X 線フーリエ変換ホログラフィ実験を行った。この結果、ナノ磁性体の試料について磁区構造を 30 nm の空間分解能で明瞭に観察することに成功した。また平成 21 年度は、輝度の高い東京大学アウトステーションにおいて、コヒーレンス長の測定およびホログラフィの予備実験を行った。その結果、東京大学アウトステーションにおいて、実時間でのイメージング、さらなる高空間分解能での観察が可能になることが分かった。

(6)「放射光界面解析」グループ

①研究分担グループ長：横谷 尚睦（岡山大学大学院、教授）

②研究項目

3D ナノ ESCA グループの界面解析手法開発のための基礎データを得ることを目的として、様々な機能性物質の表面・界面電子状態を SPring-8 および HiSOR の岡山大学ビームライン (BL)等で測定する。またこれらを通して解析技術の確立を目指す。

§ 3. 研究実施内容（文中の[A1]などの引用番号は(4-1)に対応する）

次世代の超高集積 LSI、超高密度磁気記憶システム、紫外線半導体レーザーなどの開発に向けて、ナノサイズの磁性体、極薄絶縁膜、有機薄膜、窒化物半導体薄膜の研究が進められている。しかし、これらのナノ機能性材料においては、デバイスの構造・物性、特に界面の状態は未知であり、デバイス信頼性の支配要因が不明という事態になっている。そのためデバイス作製と実際の動作状況に基づく特性評価というトライ&エラーを繰り返しながら勘と経験を頼りに開発を進めている状況が続いている。この様な「手探り」でのデバイス開発に甘んじている原因は、「ナノレベルでの評価手法が確立して(存在していない)いないこと」の一言に尽きる。次世代デバイス開発では、ナノレベルの大きさのデバイスの「界面」を評価することが重要である。本研究のねらいは「真に素子特性と相関づけられる界面電子状態の3次元分布をナノスケールの空間分解能でマッピングし、界面構造を制御した新構造素子を提案する」ことである。そのため、高輝度放射光を用いた解析、具体的には、3次元走査型光電子分光(3D ナノ ESCA)、マイクロビーム発光分光装置(マイクロ発光)、投影型光電子顕微分光(PEEM)、コヒーレント分光により、機能性界面の多角的、体系的な解析を進めている。

放射光ナノビームを用いた高い空間分解能(x,y)と角度分解光電子分光データの最大エントロピー法解析を用いた深さ分解能(z)を組み合わせることにより、ナノ構造体における界面評価技術の確立を目指して、3次元($x,y+z$)走査型光電子分光装置(図1)を現在開発中である。界面でのみ発現する強磁性層、金属的電導層、界面欠陥制御層(超巨大抵抗変化特性)、有機半導体劣化層などの化学状態・電子状態分布をあたかも断面 TEM 像を見るがごとくに描き出す3次元マッピング法は極めて応用性が高い。本年度は、高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリー(KEK-PF)から、SPring-8 の東京大学アウトステーションビームライン BL07LSU に装置を移設し、更なる装置の調整・高度化を行った。KEK-PF BL-16A ビームラインにおいては、本装置の空間分解能は、光源点-ゾーンプレート間距離とゾーンプレート-測定点間距離の縮小倍率によって理論的な限界があり、空間分解能は約 250 nm 程度であった(図2(a))。SPring-8 BL07LSU に装置を設置することにより、この縮小倍率が約 15 倍向上し、その結果、100 nm 以下の空間分解能を達

成することが出来た。しかしながら、まだ空間分解能の理論値(約 50 nm)との差が存在している。これについては、その原因が装置の振動にあることを突き止め、今後除振対策などを施すことにより改善する見通しを得ている。

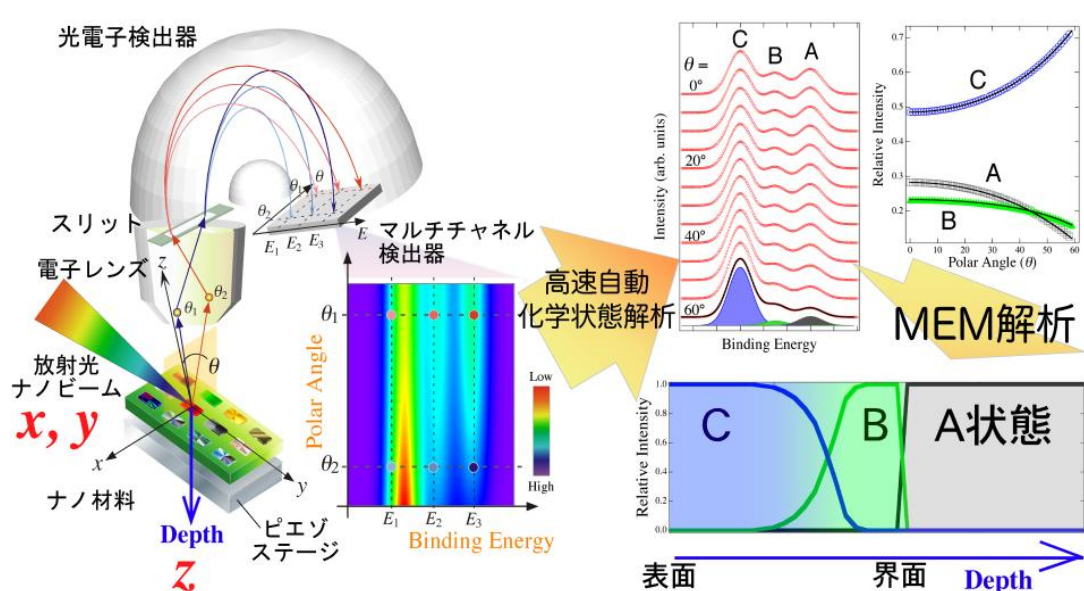


図 1. 3次元 (xy+z) 走査型光電子分光装置の概略図

一方、上記の装置開発と同時並行して、得られた角度分解内殻スペクトルの自動ピーク分離プログラム、および最大エントロピー法(MEM)によって化学状態の深さプロファイルを求めるプログラムの開発を進めた。MEM 法による深さプロファイルに関しては、既存の2層構造から金属電極/酸化膜界面3層構造へ適用性を拡張したため、あらゆる多層膜における化学状態分離深さプロファイルを決定できることが期待される。既存装置で得られた実験データをこの解析プログラムを用いて解析することにより、1. HfSiON/Si 界面におけるバンド不連続と化学結合状態の評価[A26]、2. hp-32 nm 世代 high-k ゲート絶縁膜(La 添加 HfSiON 膜)の熱的安定性解析[A29]、3. 次世代不揮発性メモリー応用が期待される電界誘起抵抗変化現象を示す金属/酸化物の界面特性評価、および4. SrTiO₃/La_{1-x}Sr_xMnO₃ スピントネル接合界面の電子状態の直接決定[A1,A7]、など様々な系における界面電子状態を明らかにした。

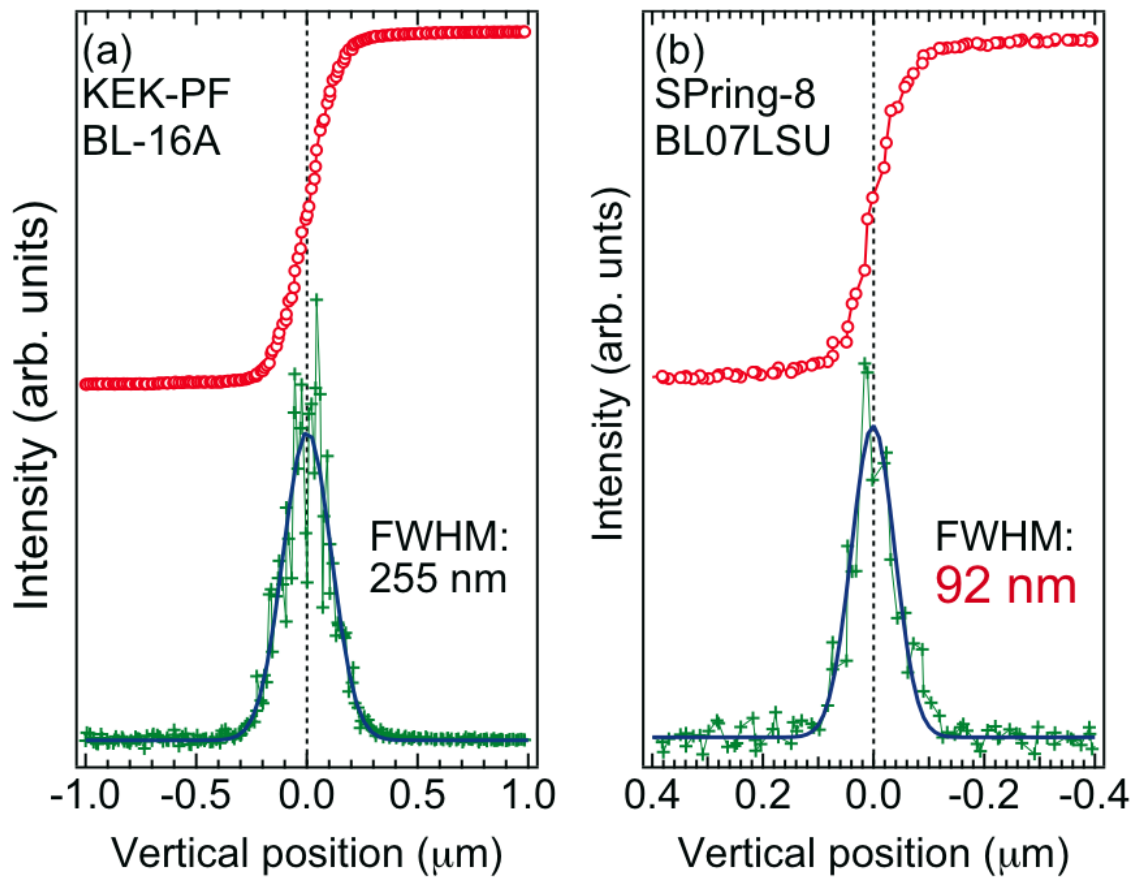


図 2. Au メッシュ試料のラインスキャンによる空間分解能の評価結果。(a)KEK-PF のビームライン BL-16A での結果。(b)SPring-8 の東京大学アウトステーションビームライン BL07LSU での結果。

また、SPring-8 の軟 X 線ビームラインにおいては、高効率-高エネルギー分解能の軟 X 線発光分光装置を利用して、液体(水・アセトニトリル)及び生体に重要な種々の有機物質(グリシン、酢酸など)と水の界面の電子状態解析を行い、濃度や pH に応じて結合環境が変わり、水や溶質の電子状態が連続的に変化する様子を観測した。また表面に吸着した種々の分子の膜厚に依存した電子状態変化を捉えた。さらに、現在開発を進めている放射光ナノビームと組み合わせることにより、デバイス界面構造において最も重要な部分(例えば有機 FET のゲート電極直下チャンネル領域)に焦点を絞ったピンポイント電子状態解析が可能になると思われる。

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

A. 「3D ナノESCA」グループ

A-1. “Thickness dependent electronic structure of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ layer in $\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ heterostructures studied by hard x-ray photoemission spectroscopy”

K. Yoshimatsu, K. Horiba, H. Kumigashira, E. Ikenaga and M. Oshima

Appl. Phys. Lett. **94**, 071901 (2009).

DOI:10.1063/1.3081016

A-2. “Angle-resolved photoemission study of Nb-doped SrTiO_3 ”

M. Takizawa, K. Maekawa, H. Wadati, T. Yoshida, A. Fujimori, H. Kumigashira and M. Oshima

Phys. Rev. B **79**, 113103 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.79.113103

A-3. “Ferromagnetic properties of epitaxial $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$ thin films grown by pulsed laser deposition”

M. Kitamura, I. Ohkubo, M. Kubota, Y. Matsumoto, H. Koinuma and M. Oshima

Appl. Phys. Lett. **94**, 132506 (2009).

DOI:10.1063/1.3111436

A-4. “Effects of thermal annealing on charge density and N chemical states in HfSiON films”

T. Tanimura, S. Toyoda, H. Kumigashira, M. Oshima, G. L. Liu, Z. Liu and K. Ikeda

Appl. Phys. Lett. **94**, 082903 (2009).

DOI:10.1063/1.3088856

A-5. “Fabrication and characterization of AlN/InN heterostructures”

T. Fujii, K. Shimomoto, R. Ohba, Y. Toyoshima, K. Horiba, J. Ohta, H. Fujioka, M. Oshima, S.

Ueda, H. Yoshikawa and K. Kobayashi

Appl. Phys. Exp. **2**, 011002 (2009).

DOI:10.1143/APEX.2.0110021110110. 13213210. 2. 011002

A-6. “In-situ photoemission study of Nd_{1-x}Sr_xMnO₃ epitaxial thin films”

H. Wadati, A. Chikamatsu, H. Kumigashira, A. Fujimori, M. Oshima, M. Lippmaa, M. Kawasaki and H. Koinuma

Phys. Rev. B **79**, 153106 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.79.153106

A-7. “Orientation dependence of the Schottky barrier height for La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃/SrTiO₃ heterojunctions”

M. Minohara, Y. Furukawa, R. Yasuhara, H. Kumigashira, and M. Oshima

Appl. Phys. Lett. **94**, 242106 (2009).

DOI:10.1063/1.3154523

A-8. “Origin of metallic states at the heterointerface between the band insulators LaAlO₃ and SrTiO₃” Yoshimatsu *et al.* Reply

K. Yoshimatsu, R. Yasuhara, H. Kumigashira and M. Oshima

Phys. Rev. Lett. **102**, 199704 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevLett.102.199704

A-9. “Electronic structure characterization of La₂NiMnO₆ epitaxial thin films using synchrotron-radiation photoelectron spectroscopy and optical spectroscopy”

M. Kitamura, I. Ohkubo, M. Matsunami, K. Horiba, H. Kumigashira, Y. Matsumoto, H. Koinuma and M. Oshima

Appl. Phys. Lett. **94**, 262503 (2009).

DOI:10.1063/1.3159826

A-10. “Madelung potentials and covalency effect in strained La_{1-x}Sr_xMnO₃ thin films studied by core-level photoemission spectroscopy”

H. Wadati, A. Maniwa, A. Chikamatsu, H. Kumigashira, M. Oshima, T. Mizokawa, A. Fujimori, and G.A. Sawatzky,

Phys. Rev. B **80**, 125107 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.80.125107

A-11. “In-depth profile of gate-insulator films on Si substrates studied by angle-resolved photoelectron spectroscopy using synchrotron radiation”

S. Toyoda, H. Kumigashira, M. Oshima, G. L. Liu, Z. Liu, and K. Ikeda

J. Surf. Anal. **15**, 299–302 (2009).

A-12. “Mechanism of Carrier Mobility Degradation Induced by Crystallization of HfO₂ Gate Dielectrics”

Takashi Ando, Takayoshi Shimura, Heiji Watanabe, Tomoyuki Hirano, Shinichi Yoshida, Kaori Tai, Shinpei Yamaguchi, Hayato Iwamoto, Shingo Kadomura, Satoshi Toyoda, Hiroshi Kumigashira and Masaharu Oshima
Appl. Phys. Exp. **2**, 071402 (2009).
DOI:10.1143/APEX.2.071402

A-13. “Chemical bonding states and band alignment of AlO_xN_y/Si gate stacks grown by metalorganic chemical vapor deposition”

G. He, S. Toyoda, Y. Shimogaki and M. Oshima
Appl. Phys. Exp. **2**, 075503 (2009).
DOI:10.1143/APEX.2.075503

A-14. “Growth of InN films by pulsed laser deposition”

K. Mitamura, J. Ohta, H. Fujioka and M. Oshima
J. Crystal Growth **311**, 1316 (2009).
DOI:10.1016/j.jcrysgro.2008.12.015

A-15. “Dependence of Magnetic Properties on Laser Ablation Conditions for Epitaxial La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃ Thin Films Grown by Pulsed Laser Deposition”

T. Harada, I. Ohkubo and M. Oshima
Materials Transactions **50**, 1081–1084 (2009).
DOI:10.2320/matertrans.MC200817

A-16. “Study on mechanism of crystallization in HfO₂ films on Si substrates by in-depth profile analysis using photoemission spectroscopy”

S. Toyoda, H. Takahashi, H. Kumigashira, M. Oshima Dong-Ick Lee, Shiyu Sun, Zhi Liu, Yun Sun, P. A. Pianetta, I. Oshiyama, K. Tai and S. Fukuda
J. Appl. Phys. **106**, 064103 (2009).
DOI:10.1063/1.3212979

A-17. “Systematic analysis of ARPES spectra of transition-metal oxides: Nature of Effective *d* band”

H. Wadati, A. Chikamatsu, M. Takizawa, H. Kumigashira, T. Yoshida, T. Mizokawa, A. Fujimori, M. Oshima, and N. Hamada

J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 094709 (2009).

DOI: 10.1143/JPSJ.78.094709

A-18. “Pressure-induced change in the electronic structure of epitaxially strained $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ thin films”

K. Horiba, A. Maniwa, A. Chikamatsu, H. Kumigashira, H. Wadati, A. Fujimori, S. Ueda, H. Yoshikawa, E. Ikenaga, J.J. Kim, and M. Oshima,
Phys. Rev. B **80**, 132406 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.80.132406

A-19. “Chemical stability and transport properties of ultrathin $\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ RuddlesdenPopper films”

M. Matvejev, K. Yoshimatsu, H. Kumigashira, M. Oshima, and M. Lippmaa,
Appl. Phys. Lett. **95**, 152110 (2009).

DOI:10.1063/1.3243978

A-20. “Epitaxial growth of high purity cubic InN films on MgO substrates using HfN buffer layers by pulsed laser deposition”

R. Ohba, J. Ohta, T. Fujii, K. Shimomoto, T. Fujii, K. Okamoto, A. Aoyama, T. Nakano, A. Kobayashi, H. Fujioka, and M. Oshima
J. Solid State Chem. **182**, 2887–2889 (2009).

DOI:10.1016/j.jssc.2009.08.002

A-21. “Growth of cubic InN films with high phase purity by pulsed laser deposition”

R. Ohba, K. Mitamura, K. Shimomoto, T. Fujii, S. Kawano, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima
J. Crystal Growth **311**, 3130–3132 (2009).

DOI:10.1016/j.jcrysgro.2009.03.010

A-22. “Fluorescence XAFS study of local structures in high- k gate dielectrics HfSiON/SiON/Si annealed at various nitrogen gas partial pressure”

H. Ofuchi, S. Toyoda, K. Ikeda, G. L. Liu, Z. Liu, and M. Oshima
J. Phys.: Conf. Ser. **190** (2009) 012116.

DOI:10.1088/1742-6596/190/1/012116

A-23. “Epitaxial growth of InN films on lattice matched EuN buffer layers”

K. Shimomoto, T. Fujii, R. Ohba, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima

J. Crystal Growth **311**, 4483–4485 (2009).

DOI:10.1016/j.jcrysgro.2009.08.020

A-24. “Room-temperature epitaxial growth of high-quality m-plane InGaN films on ZnO substrates”

K. Shimomoto, A. Kobayashi, K. Ueno, J. Ohta, M. Oshima, H. Fujioka, H. Amanai, S. Nagao, and H. Horie

Phys. Status. Solid RRL **3**, 124 (2009).

DOI:10.1002/pssr.200903072

A-25. “Coherent and incoherent d band dispersion in SrVO₃”

M. Takizawa, M. Minohara, H. Kumigashira, D. Toyota, M. Oshima, H. Wadati, T. Yoshida, A. Fujimori, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, G. Sordi and M. Rozenberg

Phys. Rev. B **80**, 235104 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.80.235104

A-26. “Relationship between band alignment and chemical states upon annealing in HfSiON/SiON stacked films on Si substrates”

T. Tanimura, S. Toyoda, H. Kamada, H. Kumigashira, M. Oshima, G. L. Liu, Z. Liu and K. Ikeda

Appl. Phys. Lett. **95**, 183113 (2009).

DOI:10.1063/1.3258073

A-27. “Layer-by-layer growth of InAlN films on ZnO(000-1) substrates at room temperature”

T. Kajima, A. Kobayashi, K. Shimomoto, K. Ueno, T. Fujii, J. Ohta, H. Fujioka and M. Oshima,

Appl. Phys. Express **3**, 021001(2010).

DOI:10.1143/APEX.3.021001

A-28. “Structural characteristics of GaN/InN heterointerfaces fabricated at low temperatures by pulsed laser deposition”

T. Fujii, A. Kobayashi, K. Shimomoto, J. Ohta, M. Oshima and H. Fujioka,

Appl. Phys. Express **3**, 021003 (2010).

DOI:10.1143/APEX.3.021003

A-29. “Annealing effects of in-depth profile and band discontinuity in

TiN/LaO/HfSiO₂/SiO₂/Si gate stack structure studied by angle-resolved photoemission spectroscopy from backside”

S. Toyoda, H. Kamada, T. Tanimura, H. Kumigashira, M. Oshima, T. Ohtsuka, Y. Hata and M. Niwa,

Appl.Phys.Lett. **96**, 042905 (2010).

DOI:10.1063/1.3298355

A-30. “Device dependence of resistance switching performance in metal/manganite/metal trilayers”

G. Sugano, I. Ohkubo, T. Harada, T. Ohnishi, M. Lippmaa, Y. Matsumoto, H. Koinuna and M. Oshima,

Materials Science and Engineering B, in press.

A-31. “Dimensional-Crossover-Driven Metal-Insulator Transition in SrVO₃ Ultrathin Films”

K. Yoshimatsu, T. Okabe, H. Kumigashira, S. Okamoto, S. Aizaki, A. Fujimori, and M. Oshima
Phys. Rev. Lett., in press.

B.「ナノビーム」グループ

B-1. “Depth-resolved XMCD study of ultrathin Mo/Co/Au films”

M.Sakamaki, H.Abe, R.Sumii, K.Amemiya, T.Konishi, T.Fujikawa, L.T.Baczewski, A.Wawro, A.Petroutchik, Z.Kurant and A.Maziewski

Acta Phys. Pol. A **115**, 309 (2009).

B-2. “Perpendicular magnetic anisotropy associated with strain relaxation in Ru/Co/Ru(0001): Anomalous relation of atomic and magnetic structures”

J.Miyawaki, D.Matsumura, H.Abe, T.Ohtsuki, E.Sakai, K.Amemiya and T.Ohta

Phys. Rev. B **80**, 020408(R) (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.80.020408

B-3. “Depth profiling of magnetic and atomic structures of ultrathin films by depth-resolved XMCD and XAFS techniques with a sub-nm depth resolution”

K.Amemiya, J.Miyawaki, H.Abe, E.O.Sako, and M.Sakamaki

J. Phys.: Conf. Ser. **190**, 012108 (2009).

DOI:10.1088/1742-6596/190/1/012108

B-4. “Surface antiferromagnetic coupling of Fe/Cu(001) induced by NO adsorption studied by means of depth-resolved XMCD method”

H.Abe, M.Sakamaki, and K.Amemiya,
J. Phys.: Conf. Ser. **190**, 012109 (2009).
DOI: 10.1088/1742-6596/190/1/012109

B-5. “High efficiency and high-energy resolution spin-polarized photoemission spectrometer”

T. Okuda, Y. Takeichi, Y. Maeda, A. Harasawa, I Matsuda, T. Kinoshita and A. Kakizaki
Eur. Phys. J. Special Topics **169**, 181-185 (2009).
DOI:10.1140/epjst/e2009-00990-y

B-6. “Substrate dependence of anisotropic electronic structure in Ag(111) quantum film studied by angle resolved photoelectron spectroscopy”

Taichi Okuda, Yasuo Takeichi, Ke He, Ayumi Harasawa, Akito Kakizaki and Iwao Matsuda
Phys. Rev. B **80** (11), 113409 (1-4) (2009).
DOI:10.1103/PhysRevB.80.113409

B-7. “Direct mapping of spin-filtered surface bands of a three-dimensional quantum spin Hall insulator”

Akinori Nishide, Alexey Taskin, Yasuo Takeichi, Taichi Okuda, Akito Kakizaki, Toru Hirahara, Kan Nakatsuji, Fumio Komori, Yoichi Andoh and Iwao Matsuda
Phys. Rev. B **81** (4), 041309 (R) (1-4) (2010).
DOI:10.1103/PhysRevB.81.041309

C.「PEEM」グループ

C-1. “Correlation between exchange bias field and domain size of ferromagnetic layer in Mn-Ir/Co-Fe bilayers”

Hirokazu Takahashi, Masakiyo Tsunoda, Keiki Fukumoto, Tetsuya Nakamura, Kuniaki Arai, Toyohiko Kinoshita and Migaku Takahashi,
J. Appl. Phys. **105**, 07D720 (2009).
DOI:10.1063/1.3073659

C-2. “Inhomogeneous chemical states in resistance-switching devices with a planar-type Pt/CuO/Pt structure”

R. Yasuhara, K. Fujiwara, K. Horiba, H. Kumigashira, M. Kotsugi, M. Oshima, and H. Takagi
Appl. Phys. Lett. **95**, 012110 (2009).

DOI:10.1063/1.3175720

C-3. “Complete assignment of Spin Domains in Antiferromagnetic NiO(100) by Photoemission Electron Microscopy and Cluster Model Calculation”

K. Arai, T. Okuda, A. Tanaka, M. Kotsugi, K. Fukumoto, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi,
T. Nakamura, T. Matsushita, T. Muro, A. Kakizaki, and T. Kinoshita
Journal of Physical Society of Japan, **79**, 013703 (2010).

DOI:10.1143/JPSJ.79.013703

C-4. “Novel Magnetic Domain Structure in Iron Meteorite Induced by the Presence of L10-FeNi”

Masato Kotsugi, Chiharu Mitsumata, Hiroshi Maruyama, Takanori Wakita, Toshiyuki Taniuchi,
Kanta Ono, Motohiro Suzuki, Naomi Kawamura, Naoki Ishimatsu, Masaharu Oshima, Yoshio
Watanabe, and Masaki Taniguchi
Appl. Phys. Express **3**, 013001 (2010).

DOI:10.1143/APEX.3.013001

D. 「マイクロ発光」グループ

D-1. “Characterization of Fe 3d states in CuFeS₂ by resonant X-ray emission spectroscopy”

K. Sato, Y. Harada, M. Taguchi, S. Shin and A. Fujimori,
Phys. Stat. Sol. (a) **206**, 1096–1100 (2009).

DOI:10.1002/pssa.200881196

D-2. “Ligand Energy Controls the Heme-Fe Valence in Aqueous Myoglobins”

Y. Harada, M. Taguchi, Y. Miyajima, T. Tokushima, Y. Horikawa, A. Chainani, Y. Shiro, Y.
Senba, H. Ohashi, H. Fukuyama and S. Shin,
J. Phys. Soc. Jpn **78**, 044802 1–5 (2009). (Paper of Editors Choice).

DOI:10.1143/JPSJ.78.044802

D-3. “Defects generation in single-walled carbon nanotubes induced by soft X-ray illumination”

Y. Mera, Y. Harada, S. Arima, K. Hata, S. Shin and K. Maeda
Chem. Phys. Lett. **473**, 138–141 (2009).

DOI:10.1016/j.cplett.2009.03.058

D-4. “Selective observation of the two oxygen atoms at different sites in the carboxyl group (-COOH) of liquid acetic acid”

T. Tokushima, Y. Horikawa, Y. Harada, O. Takahashi, A. Hiraya and S. Shin

Phys. Chem. Chem. Phys. **11**, 1679–1682 (2009).

DOI:10.1039/b818812b

D-5. “Atomic-layer-resolved bandgap structure of an ultrathin oxynitride-silicon film epitaxially grown on 6H-SiC(0001) “

T. Shirasawa, K. Hayashi, H. Yoshida, S. Mizuno, S. Tanaka, T. Muro, Y. Tamenori, Y. Harada, T. Tokushima, Y. Horikawa, E. Kobayashi, T. Kinoshita, S. Shin, T. Takahashi, Y. Ando, K. Akagi, S. Tsuneyuki and H. Tochiyama

Phys. Rev. B **79**, 241301 1–4 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.79.241301

D-6. “X-ray absorption analysis of nitrogen contribution to oxygen reduction reaction in carbon alloy cathode catalysts for polymer electrolyte fuel cells”

H. Niwa, K. Horiba, Y. Harada, M. Oshima, T. Ikeda, K. Terakura, J. Ozaki and S. Miyata

J. Power Sources **187**, 93 (2009).

DOI:10.1016/j.jpowsour.2008.10.064

D-7. “The inhomogeneous structure of water at ambient conditions”

C. Huang, K. T. Wikfeldt, T. Tokushima, D. Nordlund, Y. Harada, U. Bergmann, M. Niebuhr, T. M. Weiss, Y. Horikawa, M. Leetmaa, M. P. Ljungberg, O. Takahashi, A. Lenz, L. Ojamae, A. P. Lyubartsev, S. Shin, L. G. M. Pettersson, and A. Nilsson,

PNAS **106**, 15214–15218 (2009).

DOI:10.1073/pnas.0904743106

D-8. “Co oxidation accompanied with degradation of Pt-Co alloy cathode catalyst in polymer electrolyte fuel cell”

M. Kobayashi, S. Hidai, H. Niwa, Y. Harada, M. Oshima, Y. Horikawa, T. Tokushima, S. Shin, Y. Nakamori and T. Aoki

Phys. Chem. and Chem. Phys. **11**, 8226–8230 (2009).

DOI:10.1039/b903818c

D-9. “Identification of valence electronic states of aqueous acetic acid in acid-base

equilibrium using site-selective X-ray emission spectroscopy”

Y. Horikawa, T. Tokushima, Y. Harada, O. Takahashi, A. Chainani, Y. Senba, H. Ohashi, A. Hiraya and S. Shin

Phys. Chem. and Chem. Phys. **11**, 8676–8679 (2009).

DOI: 10.1039/b910039c

D-10. “Electronic Structures of Imidazolium Based Ionic Liquids”

K. Kanai, T. Nishi, T. Iwahashi, Y. Ouchi, Y. Harada, S. Shin and K. Seki

J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **174**, 110–115 (2009).

DOI: 10.1016/j.elspec.2009.02.004

D-11. “The growth process of the first water layer and crystalline ice on Rh(111)”

Atsushi Beniya, Yuji Sakaguchi, Tetsuya Narushima, Kozo Mukai, Yoshiyuki Yamashita, Shinya Yoshimoto and Jun Yoshinobu,

J. Chem. Phys. **130**, 034706 (2009).

DOI:10.1063/1.3060952

D-12. “Electron Transport Properties and Dielectric Breakdown of Alkyl Monolayers Chemisorbed on an Si(111) Surface”

Masayuki Furuhashi, Ayako Omura, Yoshiyuki Yamashita, Kozo Mukai, Jun Yoshinobu, Kazuto Akagi and Shinji Tsuneyuki,

Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 055003 (2009).

DOI:10.1143/JJAP.48.055003

D-13. “Adsorption and reaction of NO on the clean and nitrogen modified Rh(111) surfaces ”

Atsushi Beniya, Takanori Koitaya, Hiroshi Kondoh, Kozo Mukai, Shinya Yoshimoto, and Jun Yoshinobu,

J. Chem. Phys. **131**, 084704 (2009).

DOI:10.1063/1.3212596.

D-14. “Low Temperature Surface Photochemistry of pi-bonded Ethylene on Si(100)c(4x2)”

Hirobumi Umeyama, Tetsuo Katayama, Kozo Mukai, Yoshiyuki Yamashita and Jun Yoshinobu:

Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 08JB14 (2009).

DOI:10.1143/JJAP.48.08JB14

D-15. “Observation of charge transfer states of F4-TCNQ on the 2-methylpropene

chemisorbed Si(100)(2x1) surface”

Kozo Mukai and Jun Yoshinobu,

J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **174**, 55–58 (2009).

DOI:10.1016/j.elspec.2009.04.006

D-16. “Low-temperature observation of the softened C-H stretching vibrations of cyclohexane on Rh(111)”

Takanori Koitaya, Atsushi Beniya, Kozo Mukai, Shinya Yoshimoto, and Jun Yoshinobu,

Phys. Rev. B **80**,193409(2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.80.193409

E.「コヒーレント分光」グループ

E-1. “Doping dependence of the gap anisotropy of the high-temperature YBa₂Cu₃O₇-superconductor”

K. Nakayama, T. Sato, K. Terashima, T. Arakane, T. Takahashi, M. Kubota, K. Ono, T. Nishizaki, Y. Takahashi, and N. Kobayashi

Phys. Rev. B **79**, 140503 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.79.140503

E-2. “Effects of chemical pressure on the Fermi surface and band dispersion of the electron-doped high-T_c superconductors”

M. Ikeda, T. Yoshida, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, Hena Das, T. Saha-Dasgupta, K. Unozawa, Y. Kaga, T. Sasagawa, and H. Takagi

Phys. Rev. B **80**, 014510 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevB.80.014510

E-3. “Universal versus Material-Dependent Two-Gap Behaviors of the High-T_c Cuprate Superconductors: Angle-Resolved Photoemission Study of La_{2-x}Sr_xCuO₄”

T. Yoshida, M. Hashimoto, S. Ideta, A. Fujimori, K. Tanaka, N. Mannella, Z. Hussain, Z.-X. Shen, M. Kubota, K. Ono, Seiki Komiya, Yoichi Ando, H. Eisaki, and S. Uchida

Phys. Rev. Lett. **103**, 037004 (2009).

DOI:10.1103/PhysRevLett.103.037004

E-4. “Synthesis of Mn-Substituted Titania Nanosheets and Ferromagnetic Thin Films with Controlled Doping”,

Xiaoping Dong, Minoru Osada, Hidekazu Ueda, Yasuo Ebina, Yoshinori Kotani, Kanta Ono, Shigenori Ueda, Keisuke Kobayashi, Kazunori Takada, Takayoshi Sasaki,
Chem. Mater. **21**, 4366–4373 (2009).
DOI:10.1021/cm900210m

E-5. "Three-Dimensional Electronic Structure of Superconducting Iron Pnictides Observed by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy"

Walid Malaeb, Teppei Yoshida, Atsushi Fujimori, Masato Kubota, Kanta Ono, Kunihiro Kihou, Parasharam M. Shirage, Hijiri Kito, Akira Iyo, Hiroshi Eisaki, Yasuyuki Nakajima, Tsuyoshi Tamegai, and Ryotaro Arita
J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 123706 (2009).
DOI:10.1143/JPSJ.78.123706

F.「放射光界面解析」グループ

F-1. "Spectroscopic evidence of the existence of substantial Ca 3d derived states at the Fermi level in the Ca-intercalated graphite superconductor CaC₆"

H. Okazaki, R. Yoshida, K. Iwai, K. Noami, T. Muro, T. Nakamura, T. Wakita, Y. Muraoka, M. Hirai, F. Tomioka, Y. Takano, A. Takenaka, M. Toyoda, T. Oguchi, T. Yokoya
Phys. Rev. B **80**, 035420–1–5 (2009).
DOI:10.1103/PhysRevB.80.035420

F-2. "Band dispersion near the Fermi level for VO₂ thin films grown on TiO₂ (001) substrates"

K. Saeki, T. Wakita, Y. Muraoka, M. Hirai, T. Yokoya, R. Eguchi, S. Shin
Phys. Rev. B **80**, 125406 (2009).
DOI:10.1103/PhysRevB.80.125406

F-3. "Bulk-Sensitive Spectroscopic Studies on Noncentrosymmetric Superconducting System of Mg-Ir-B"

R. Yoshida, H. Okazaki, K. Iwai, K. Noami, T. Muro, M. Okawa, K. Ishizaka, S. Shin, Z. Li, J.L. Luo, G.-q. Zheng, T. Oguchi, M. Hirai, Y. Muraoka, T. Yokoya
Physica C **469**, 1034 (2009).
DOI:10.1016/j.physc.2009.05.175

F-4. "The electronic structure of Ca-intercalated superconducting graphite CaC₆"

H. Okazaki, R. Yoshida, K. Iwai, K. Noami, T. Muro, T. Nakamura, T. Wakita, Y. Muraoka, M.

Hirai, Y. Takano, F. Tomioka, A. Takenaka, M. Toyoda, T. Oguchi, T. Yokoya
Physica C **469**, 1041 (2009).

DOI:10.1016/j.physc.2009.05.172

(4-2) 知財出願

- ① 平成21年度特許出願件数(国内 0件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 1件)