

「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する。そのため、

- 1) ナノビーム化した軟 X 線放射光に対して試料を走査する「3次元ナノ ESCA 装置」を開発する。  
半導体界面、電極/絶縁体界面、電極/強相関酸化物界面、有機物/金属界面などのデバイス構造を試料として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 次元解析を可能にすること、
  - 2) 超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うとともに、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調べ、磁性デバイス開発の指針を得ること、
  - 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て、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手法を提案すること、
  - 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行い、デバイス構造に最適な多層構造を設計すること、
- の 4 項目を多角的、体系的に行い、デバイス特性向上に直結する機能界面解析・制御ステーションを構築する。

## 2. 研究実施内容 (文中にある参照番号は 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「真に素子特性と関連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。

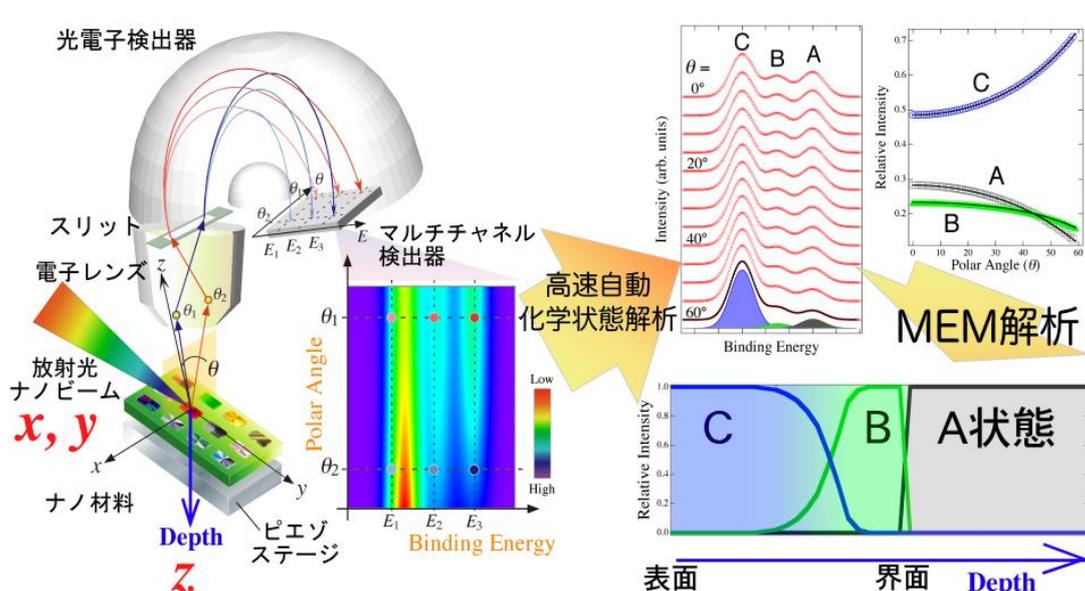
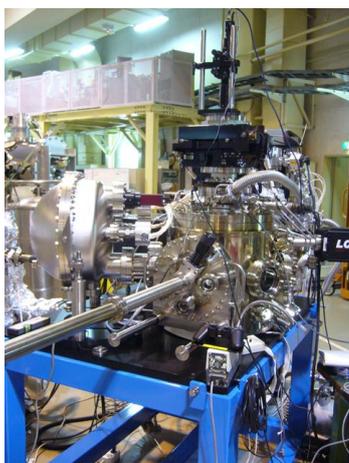


図 1. 3次元 (xy+z) 走査型光電子分光装置の概略図

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otonファクトリー (KEK-PF) において装置の建設及び調整を行った。図2 (a) にその写真を示す。ゾーンプレートとしては、最終的な空間分解能 50 nm 以下を達成するために、NTT-ATN 社製の直径 200  $\mu\text{m}$ 、再外殻ゾーン幅 35 nm のものを採用した。KEK-PF BL-16A ビームラインにおいてテスト実験を行った結果、空間分解能としては 200 nm を達成し、また Au のメッシュ試料の光電子強度マッピングに成功した (図2 (b))。現状として、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

サンプルと測定点間距離の縮小率によって支配されている。KEK-PF においてはスペース上の制約によりこれ以上縮小率を上げることは不可能であるが、ほぼこの縮小率における理論値通りの空間分解能が得られているため、来年度建設予定の SPring-8 の超高輝度アンジュレータービームラインに設置することにより、50 nm 以下の空間分解能が達成できると期待される。また、光電子アナライザーの広角取り込み角 (60 度) については、電子レンズに静電メッシュを組み込んだアナライザーの開発を VG-Scienta 社との共同で進め、半球メッシュ機構を備えた全段電子レンズシステムを採用することにより、広角取り込みが可能である見通しを得た。

(a)



(b)

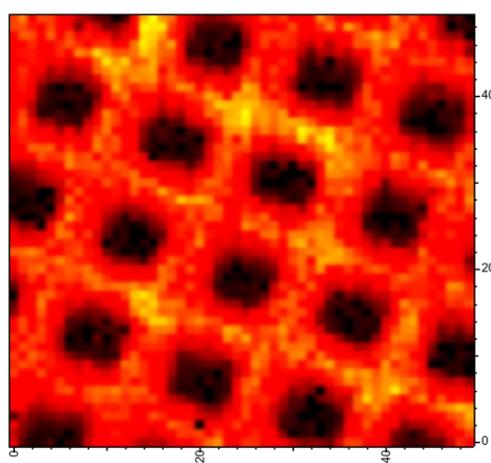


図 2. (a) 建設した 3D ナノ ESCA 装置の写真 (b) 本装置で得られた 5  $\mu\text{m}$  ピッチ Au メッシュの Au 4f 光電子強度マッピング

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行った。MEM 法による深さプロファイルに関しては、分離した各化学状態におけるピーク強度の角度依存性から、初期条件によっては収束値にばらつきがでるものの、2層構造の多層膜における化学状態分離深さプロファイルを化学組成精度 1%以内で決定することを可能とした。これらのプログラム開発を通して、2層以上の多層膜にも化学組成精度 1%以内で適用できるようにするためには、ばらつきの少ない高精度な光電子スペクトルを測定し、ノイズの非常に少ない「なめらかな」角度依存性データを測定することが重要であるとの知見を得た。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. High-k ゲート絶縁膜 HfSiON/Si 界面の化学状態決定と製造プロセス依存性 [A12]、2. a-Si 上部電極/HfSiON 界面における熱的安定性の解明 [A15]、3. High-k ゲート絶縁膜におけるトラップ密度の深さプロファイル解析技術の開発、トラップを抑制するプロセス設計指針の提案 [A13]、4. 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 [A3]、および 5. SrTiO<sub>3</sub>/La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> スピントネル接合界面の電子状態の直接決定 [A2]、6. LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 界面に発現する金属状態の起源解明 [A1] 等を行い、様々な系における界面電子状態を明らかにした。

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。

### 3. 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。装置の設計が終了し、現在は高エネルギー加速器研究機構 PhotonFactory のBL16において組み上げ・調整を進めている。本装置は、今後SPring-8の東京大学アウトステーションに移設・設置し(H21年度以降)、Fresnel zone plate (FZP)を用いた数10 nmφ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)、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SrTiO<sub>3</sub>構造の界面構造、および金属/ペロブスカイトMn酸化物(Pr<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub>)、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)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 μm、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・主席研究員)

#### 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10nm、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く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、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。このことにより、さらに輝度の高い東京大学アウトステーションを利用することで、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。

#### 4. 研究成果の発表等

##### (1) 論文発表 (原著論文)

##### A. 「3D ナノ ESCA」グループ

1. A-1. "Origin of metallic states at the heterointerface between the band insulators  $\text{LaAlO}_3$  and  $\text{SrTiO}_3$ " K. Yoshimatsu, R. Yasuhara, H. Kumigashira and M. Oshima Phys. Rev. Lett. 101, 026802 (2008).
2. A-2. "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).
3. A-3. "Highly Reliable  $\text{TaO}_x$  ReRAM and Direct Evidence of Redox Reaction Mechanism" Z. Wei, Y. Kanzawa, K. Arita, Y. Katoh, K. Kawai, S. Muraoka, S. Mitani, S. Fujii, K. Katayama, M. Iijima, T. Mikawa, T. Ninomiya, R. Miyanaga, Y. Kawashima, K. Tsuji, A. Himeno, T. Okada, R. Azuma, K. Shimakawa, H. Sugaya, T. Takagi, R. Yasuhara, K. Horiba, H. Kumigashira, and M. Oshima Tech. Dig. - Int. Electron Devices Meet (IEEE) 2008, 293 (2008).
4. A-4. "Angle-resolved photoemission study of Nb-doped  $\text{SrTiO}_3$ " M. Takizawa, K. Maekawa, H. Wadati, T. Yoshida, A. Fujimori, H. Kumigashira, and M. Oshima Phys. Rev. B 79, 113103 (2009).
5. A-5. "Electronic band structure of transparent conductor: Nb-doped anatase  $\text{TiO}_2$ " T. Hitosugi, H. Kamisaka, K. Yamashita, H. Nogawa, Y. Furubayashi, S. Nakao, N. Yamada, A. Chikamatsu, H. Kumigashira, M. Oshima, Y. Hirose, T. Shimada, and T. Hasegawa Appl. Phys. Express 1, 111203 (2008).
6. A-6. "Epitaxial growth and surface metallic nature of  $\text{LaNiO}_3$  thin films" K. Tsubouchi, I. Ohkubo, H. Kumigashira, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, and M. Oshima Appl. Phys. Lett. 92, 262109 (2008).
7. A-7. "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).
8. A-8. "Trap-controlled space-charge-limited-current mechanism in resistance switching at metal/manganese oxide interface" T. Harada, I. Ohkubo, K. Tsubouchi, H. Kumigashira, T. Ohnishi, M. Lippmaa, Y. Matsumoto, H. Koinuma, and M. Oshima Appl. Phys. Lett. 92, 222113 (2008).
9. A-9. "Electrode dependence and film resistivity effect in the electric-field induced

- resistance-switching phenomena in epitaxial NiO films " T. Ishihara, I. Ohkubo, K. Tsubouchi, H. Kumigashira, U. S. Joshi, Y. Matsumoto, H. Koinuma, and M. Oshima *Materials Science and Engineering B* 148, 42-44 (2008).
10. A-10. "Modification of reflection high energy electron diffraction system for in-situ monitoring of oxide epitaxy at high oxygen pressure " K. Tsubouchi, I. Ohkubo, T. Harada, H. Kumigashira, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, and M. Oshima *Materials Science and Engineering B* 148, 16-18 (2008).
  11. A-11. "Field-induced resistance switching at metal / perovskite manganese oxide interface" I. Ohkubo, K. Tsubouchi, T. Harada, H. Kumigashira, K. Itaka, Y. Matsumoto, T. Ohnishi, M. Lippmaa, H. Koinuma, and M. Oshima *Mater. Sci. Eng. B* 148 13-15 (2008).
  12. A-12. "Control of oxidation and reduction by ambient-control annealing for HfSiO<sub>x</sub>N<sub>y</sub>/Si gate stack studied by synchrotron-radiation photoemission spectroscopy " H. Kamada, T. Tanimura, S. Toyoda, H. Kumigashira, M. Oshima, G.L. Liu, Z. Liu , and K. Ikeda *Appl. Phys. Lett.* 93, 212903 (2008).
  13. A-13. "Depth profiling of chemical states and charge density in HfSiON by photoemission spectroscopy using synchrotron radiation" T. Tanimura, S. Toyoda, H. Kumigashira, M. Oshima, K. Ikeda, G.L. Liu and Z. Liu *Appl. Phys. Lett.* 92, 082903 (2008).
  14. A-14. "Analysis of x-ray irradiation effect in high-k gate dielectrics by time-dependent photoemission spectroscopy using synchrotron radiation" T. Tanimura, S. Toyoda, H. Kumigashira, M. Oshima, K. Ikeda, G.L. Liu, Z. Liu and K. Usuda *Surface and Interface Analysis* 40, 1606-1609 (2008).
  15. A-15. "Thermal stability in a-Si/HfSiO(N)/Si gate stack structures studied by photoemission spectroscopy using synchrotron radiation" S. Toyoda, H. Kamada, T. Tanimura, H. Kumigashira, M. Oshima, G.L. Liu, Z. Liu , and K. Ikeda *Appl. Phys. Lett.* 93, 182906 (2008).
  16. A-16. "Chemical-state-resolved in-depth profiles of gate stack structures on Si studied by angle-dependent photoemission spectroscopy" S. Toyoda, J. Okabayashi, M. Oshima, K. Ikeda, G.L. Liu, Z. Liu and K. Usuda *Surface and Interface Analysis* 40, 1619-1622 (2008).
  17. A-17. "Application of SPELEEM to high-k gate dielectrics: relationship between surface morphology and photoelectron spectra during Hf-silicide formation" R. Yasuhara, T. Taniuchi, H. Kumigashira, M. Oshima, F.Z. Guo, K. Ono, T. Kinoshita, K. Ikeda, G-L Liu, Z. Liu, and K. Usuda *Appl. Surf. Sci.* 254, 4757-4761 (2008).
  18. A-18. "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).
  19. A-19. "Band-bending inhomogeneity of Au adsorbed surface evaluated with Si 2p core-level spectra" Canhua Liu, I. Matsuda, T. Hirahara, S. Hasegawa, J. Okabayashi, S. Toyoda and M. Oshima *Surf. Sci.* 602, 3316-3322 (2008).

20. A-20. "Time Scaling and Gate Leakage Reduction for n-Type Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor with HfSi<sub>x</sub>/HfO<sub>2</sub> Gate Stack by Interfacial Layer Formation Using Ozone Water-Last Treatment " I. Oshiyama, K. Tai, T. Hirano, S. Yamaguchi, K. Tanaka, Y. Hagimoto, T. Uemura, T. Ando, K. Watanabe, R. Yamamoto, S. Kanda, J. L. Wang, Y. Tateshita, H. Wakabayashi, Y. Tagawa, M. Tsukamoto, H. Iwamoto, M. Saito, M. Oshima, S. Toyoda, N. Nagashima, and S. Kadomura Jpn. J. Appl. Phys. 47 (2008) pp. 2379-2382.
21. A-21. "Carbon alloy catalysts: Active sites for oxygen reduction reaction" T. Ikeda, Mauro Boero, S-F Huang, K. Terakura, M. Oshima and J. Ozaki J. Phys. Chem. 112, 14706 (2008).
22. A-22. "X-ray absorption studies of electronic structures in carbon alloy cathode catalysts for PEFC" H. Niwa, K. Horiba, Y. Harada, M. Oshima, T. Ikeda, K. Terakura, J. Ozaki, and S. Miyata J. Power Sources 187, 93(2009).
23. A-23. "Growth and magnetic properties of zb-type MnAs films on GaAs substrates by high temperature MBE" K. Kubo, Y. Kato, K. Kanai, J. Ohta, H. Fujioka and M. Oshima J. Crystal Growth 310, 4535-4538 (2008).
24. A-24. "Depth profile photoemission study of thermally diffused Mn/GaAs(001) interfaces" Y. Osafune, G.S. Song, J.I. Hwang, Y. Ishida, M. Kobayashi, K. Ebata, Y. Ooki, A. Fujimori, J. Okabayashi, K. Kanai, K. Kubo, and M. Oshima J. Appl. Phys. 103, 103717 (2008).
25. A-25. "Nature of magnetic coupling between Mn ions in as-grown Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As studied by x-ray magnetic circular dichroism" Y. Takeda, M. Kobayashi, T. Okane, T. Ohkochi, J. Okamoto, Y. Saitoh, K. Kobayashi, H. Yamagami, A. Fujimori, A. Tanaka, J. Okabayashi, M. Oshima, S. Ohya, P.N. Hai, M. Tanaka Phys. Rev. Lett. 100, 247202 (2008).
26. A-26. "Low-temperature growth of high quality AlN films on carbon face 6H-SiC" M.H. Kim, J. Ohta, A. Kobayashi, M. Oshima and H. Fujioka Phys. Stat. Sol. (RRL) 2, 13 (2008).
27. A-27. "Epitaxial growth of AlN on single crystal Mo substrates" K. Okamoto, S. Inoue, T. Nakano, T.-W. Kim, M. Oshima and H. Fujioka Thin Solid Films 516, 4809 (2008).
28. A-28. "Epitaxial growth of GaN films grown on single crystal Fe substrates" K. Okamoto, S. Inoue, N. Matsuki, T-W. Kim, J. Ohta, M. Oshima, H. Fujioka, and A. Ishii Appl. Phys. Lett. 93, 251906 (2008).
29. A-29. "Analysis of ITO/Mg:GaN interfaces by synchrotron radiation hard x-ray photoemission spectroscopy and their electrical characteristics" Y. Toyoshima, K. Horiba, M. Oshima, J. Ohta, H. Fujioka, H. Miki, S. Ueda, Y. Yamashita, H. Yoshikawa and K. Kobayashi Appl. Surf. Sci. 255, 2149-2152 (2008).
30. A-30. "Determination of band structures of InN/GaN interfaces by synchrotron radiation hard X-ray photoemission spectroscopy" Y. Toyoshima, K. Horiba, M. Oshima, J. Ohta, H. Fujioka, H. Miki, S. Ueda, Y. Yamashita, H. Yoshikawa and K. Kobayashi e-Journal of Surface Science and Nanotechnology 6, 254-257 (2008).
31. A-31. "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).
32. A-32. "Growth of InN films by pulsed laser deposition" K. Mitamura, J. Ohta, H. Fujioka, and M. Oshima J. Crystal Growth, in press.
33. A-33. "Design of a new soft X-ray beamline for a long undulator source of SPring-8" Y. Senba, H. Ohashi, A. Harasawa, M. Fujisawa, T. Okuda, I. Matsuda, S. Takahashi, N. Nariyama, T. Matsushita, T. Ohata, Y. Fujikawa, T. Tanaka, K. Takeshita, S. Goto, H. Kitamura, A. Kakizaki, and M. Oshima Nucl. Instrum. Meth. in press.
34. A-34. "Dependence of Magnetic Properties on Laser Ablation Conditions for Epitaxial  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  Thin Films Grown by Pulsed Laser Deposition" T. Harada, I. Ohkubo and M. Oshima Materials Transactions in press.
35. A-35. "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. in press.
36. A-36. "In-situ photoemission study of  $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  epitaxial thin films" H. Wadati, A. Chikamatsu, H. Kumigashira, A. Fujimori, M. Oshima, M. Lippmaa, M. Kawasaki, and H. Koinuma Phys. Rev. B, in press.

#### B. 「ナノビーム」グループ

37. B-1. "Huge perpendicular magnetic anisotropy of Fe single layer and spin reorientation transitions observed in Fe/Co/Pd(111) films" H.Abe, J.Miyawaki, E.O.Sako, and K.Amemiya Phys. Rev. B 78 014424 (2008).
38. B-2. "Weak electron correlation effects observed in angle-resolved photoemission spectra of MnSi(100)" K. Kura, K. Takano, Y. Takeichi, A. Harasawa, T. Okuda, I. Matsuda and A. Kakizaki J. Phys. Soc. Jpn. 77, 024709 (1-5) (2008).
39. B-3. "Spin-polarization of quantum well states in Ag films induced by Rashba effect at surface" K. He, T. Hirahara, T. Okuda, S. Hasegawa, A. Kakizaki and I. Matsuda Phys. Rev. Lett. 101, 107604 (1-4) (2008).
40. B-4. "A new spin-polarized photoemission spectrometer with very high efficiency and energy resolution" T. Okuda, Y. Takeichi, Y. Maeda, A. Harasawa, I. Matsuda, T. Kinoshita and A. Kakizaki Rev. Sci. Instrum. 79, 123117 (1-5) (2008).
41. B-5. "CO adsorption effects on the magnetism and surface structure of Fe/Cu(001)" H.Abe, K.Amemiya, J.Miyawaki, E.O.Sako, M.Sakamaki, D.Matsumura, T.Ohtsuki, E.Sakai, and T.Ohta e-J. Surf. Sci. Nanotech 6 (2008) 233.
42. B-6. "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 (2009) 309.

#### C. 「PEEM」グループ

43. C-1. "Construction and development of a time-resolved x-ray magnetic circular dichroism-photoelectron emission microscopy system using femtosecond laser pulses at BL25SU SPring-8" K. Fukumoto, T. Matsushita, H. Osawa, T. Nakamura, T. Muro, K. Arai, T. Kimura, Y. Otani & T. Kinoshita *Rev. Sci. Instrum.* 79, 063903-1~5 (2008).
44. C-2. "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, *Journal of Applied Physics*, 105 (2009), in press.

#### D. 「マイクロ発光」グループ

45. D-1. "Soft x-ray emission spectroscopy of Co nanoislands on a nitrogen-adsorbed Cu(001) surface" Y. Takagi, K. Nakatsuji, Y. Yoshimoto, T. Iimori, K. Yaji, K. Tomatsu, Y. Harada, T. Takeuchi, T. Tokushima, Y. Takata, S. Shin, T. Ishikawa, F. Komori *Surf. Sci.* 602, L65-L68 (2008).
46. D-2. "High resolution x-ray emission spectroscopy of liquid water: the observation of two structural motifs" T. Tokushima, Y. Harada, O. Takahashi, Y. Senba, H. Ohashi, L. G. M. Pettersson, A. Nilsson, S. Shin, *Chem. Phys. Lett. (FRONTIERS article)* 460, 387-400 (2008).
47. D-3. " $\sigma$ -bonding contribution of a strong  $\pi$ -acceptor molecule: surface chemical bond of  $\text{SO}_2$  on Ni(100)" T. Tokushima, K. Sodeyama, Y. Harada, Y. Takata, M. Nagasono, Y. Kitajima, Y. Tamenori, H. Ohashi, S. Tsuneyuki, A. Hiraya, S. Shin, *Phys. Rev. B* 78, 085405 1-5 (2008).
48. D-4. "Comment on "Isotope and temperature effects in liquid water probed by x-ray absorption and resonant x-ray emission spectroscopy" L. G. M. Pettersson, T. Tokushima, Y. Harada, O. Takahashi, S. Shin, A. Nilsson, *Phys. Rev. Lett.* 100, 249801 (2008).
49. D-5. "The role of a graphitic surface layer in electron-stimulated ordering in tetrahedral amorphous carbon films" S. Liang, T. Banno, Y. Mera, M. Kitajima, K. Ishioka, Y. Harada, Y. Kitajima, S. Shin, K. Maeda, *New Carbon Materials* 23, 241-244 (2008).
50. D-6. "Characterization of Fe 3d states in  $\text{CuFeS}_2$  by resonant X-ray emission spectroscopy" K. Sato, Y. Harada, M. Taguchi, S. Shin, A. Fujimori, *Phys. Stat. Sol. (a)*, accepted.

#### E. 「コヒーレント分光」グループ

51. E-1. "X-ray nanospectroscopic characterization of a molecularly thin ferromagnetic  $\text{Ti}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  nanosheet" Y. Kotani, T. Taniuchi, M. Osada, T. Sasaki, M. Kotsugi, F. Z. Guo, Y. Watanabe, M. Kubota, and K. Ono, *Appl. Phys. Lett.* 93, 093112 (2008).
52. E-2 "Langmuir-Blodgett Fabrication of Nanosheet-Based Dielectric Films without an Interfacial Dead Layer" M. Osada, K. Akatsuka, Y. Ebina, Y. Kotani, K. Ono, H. Funakubo, S. Ueda, K. Kobayashi, K. Takada, and T. Sasaki, *Jpn. J. App. Phys.* 47,

- 7556-7560 (2008).
53. E-3 "Photoemission Study of the Electronic Structure of  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  and  $\text{LaFePO}_{1-x}\text{F}_x$ "  
Walid Malaeb, Teppei Yoshida, Takashi Kataoka, Atsushi Fujimori, Masato Kubota, Kanta Ono, Hidetomo Usui, Kazuhiko Kuroki, Ryotaro Arita, Hideo Aoki, Yoichi Kamihara, Masahiro Hirano and Hideo Hosono J. Phys. Soc. Jpn. 77, Supplement C 69 (2008).
  54. E-4 "Electronic Structure and Electron Correlation in  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  and  $\text{LaFePO}_{1-x}\text{F}_x$ "  
Walid Malaeb, Teppei Yoshida, Takashi Kataoka, Atsushi Fujimori, Masato Kubota, Kanta Ono, Hidetomo Usui, Kazuhiko Kuroki, Ryotaro Arita, Hideo Aoki, Yoichi Kamihara, Masahiro Hirano and Hideo Hosono J. Phys. Soc. Jpn. 77, 093714 (2008).
  55. E-5 "Band dispersion and bonding character of potassium on graphite" N. Kamakura, M. Kubota, and K. Ono Surf. Sci. 95, 602 (2008).
  56. E-6 "Anisotropy of gap and kink energies in the trilayer high-Tc cuprate superconductor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ " S. Ideta, K. Takashima, M. Hashimoto, T. Yoshida, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, K. Kojima and S. Uchida, J. Phys.: Conf. Ser. 108, 012015-1-5 (2008).
  57. E-7. "Effects of annealing process on the electronic structure of the electron-doped high-Tc superconductor  $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ " M. Ikeda, T. Yoshida, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, Y. Kaga, T. Sasagawa, H. Takagi J. Phys.: Conf. Ser. 108, 012016-1-6 (2008).
  58. E-8. "Doping evolution of the electronic structure in the single-layer cuprates  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ : Comparison with other single-layer cuprates" M. Hashimoto, T. Yoshida, H. Yagi, M. Takizawa, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, K. Tanaka, D.H. Lu, Z.-X. Shen, S. Ono and Yoichi Ando Phys. Rev. B 77, 094561 (2008).
  59. E-8. "Fabrication of Multiple Slit Using Stacked-Sliced Method for Hard X-ray Talbot-Lau Interferometer" K. Wan, Y. Takeda, W. Yashiro, and A. Momose Jpn. J. Appl. Phys. 47, 7412-7414 (2008).
  60. E-9. "Efficiency of capturing a phase image using cone-beam x-ray Talbot interferometry", W. Yashiro, Y. Takeda and A. Momose J. Opt. Soc. Am. A 25, 2025-2039 (2008).
  61. E-10. "Differential Phase X-ray Imaging Microscopy with X-ray Talbot Interferometer" Y. Takeda, W. Yashiro, T. Hattori, A. Takeuchi, Y. Suzuki, A. Momose Appl. Phys. Express 1, 117002 (2008).
  62. E-11. "Sensitivity of X-ray Phase Imaging Based on Talbot Interferometry" A. Momose, W. Yashiro and Y. Takeda Jpn. J. Appl. Phys. 47, 8077 (2008).

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数 : 1 件 (CREST 研究期間累積件数 : 1 件)