

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：22701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05330

研究課題名(和文) 菊池パターンを利用した表面の構造解析手法の確立

研究課題名(英文) Development of surface structure analysis method using Kikuchi pattern

研究代表者

重田 諭吉 (Shigeta, Yukichi)

横浜市立大学・生命ナノシステム科学研究科(八景キャンパス)・客員教授

研究者番号：70106293

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、表面構造の解析法として菊池パターンを用いる新たな測定手法の確立を目的として実施した。菊池パターンは非弾性散乱により形成された二次的入射波が種々の方向から入射し、各格子面からの回折波により直線状または曲線状の像を形成したものであるため、入射条件を変化させて測定して得られる多くの情報を含んでいる。種々の回折条件における情報は非弾性散乱確率を知ることで1枚の菊池パターンから求めることができる。そこで、菊池パターンの強度と動力的な回折強度計算の結果を比較したところ、表面波共鳴条件が起こる菊池エンベロープで表面プラズモンの散乱断面積が著しく増大することを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

結晶表面の構造は、結晶の周期性が断ち切られた表面があるために結晶内部とは異なった構造を形成している。そして、結晶表面の性質は、その構造と密接に関連しているために、表面では特有の電子的・機械的物性が現れる。特に、半導体表面ではその特異な物性により、新たな機能を持った素子が創造できる可能性がある。そのため、表面構造を正確に知る必要があるが、従来の電子線回折実験では多くの入射条件による測定結果が必要となる。そこで、一つの入射条件で得られた回折パターンのバックグラウンドである菊池パターンから構造解析する手法の確立を目指した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to establish a new measurement method using the Kikuchi pattern as an analysis method for the surface structure. In the Kikuchi pattern, secondary incident waves created by inelastic scattering are incident from various directions, and diffracted waves from each lattice plane form linear or curved images, so it contains a lot of information at various incident conditions. Therefore, the information under various diffraction conditions can be obtained from a single Kikuchi pattern by knowing the inelastic scattering probability. Then, we compared the intensity of the Kikuchi pattern and the result of intensity calculation based on the dynamical diffraction theory and found that the scattering cross-section of the surface plasmon remarkably increases in the Kikuchi envelope where the surface wave resonance condition occurs.

研究分野：表面科学

キーワード：表面構造 RHEED 菊池パターン 構造解析 非弾性散乱

1. 研究開始当初の背景

表面構造の解析に有力な手法として、反射高速電子回折 (RHEED) 法がある。近年、結晶表面や薄膜の構造解析に高い精度が求められ、詳細な構造解析の手法として、ワイゼンベルグ RHEED 法のように入射方位を細かく変化させて撮影した膨大な数の回折点の強度をフーリエ変換し、詳細な表面構造を解析する手法が開発され成果を収めている[1]。しかし、入射方位を超高真空中で正確に変化させるためには、高精度の試料台と回転機構が不可欠と成り、手軽に回折強度のデータを収集することは非常に難しい。これに対し、収束電子線を用いた局所領域の高精度な歪測定法があり、 10^{-4} の歪量の測定が報告されている[2-6]。そこで、薄膜・表面の高精度解析が可能な簡便な手法を新たに考えた。

図 1(a)に代表的な Si(111) 7X7 表面の回折像を示す。RHEED 像には、回折スポットの他に直線状の菊池線や放物線状の菊池エンベロープが観察される。この菊池パターンは、以下のような過程によって生成される。1) 入射電子線がフォノンやプラズモンといった素励起を励起することにより、エネルギーと運動量の変化を伴う非弾性散乱を受ける (図 1(b))。この非弾性散乱により入射電子線は、数 meV~十数 eV のエネルギーを失うが、高速電子線にとって 0.1% 以下の変化である。一方、運動量は逆格子点間隔を超える程の量となるため、種々の方向に二次的入射波が形成される。2) この二次的入射波の内、図 1(c)に示すように、ある逆格子点 N に対する回折条件を満たす二次的入射波は、楕円で示す位置から入射する波であり、これらは楕円上から N 点

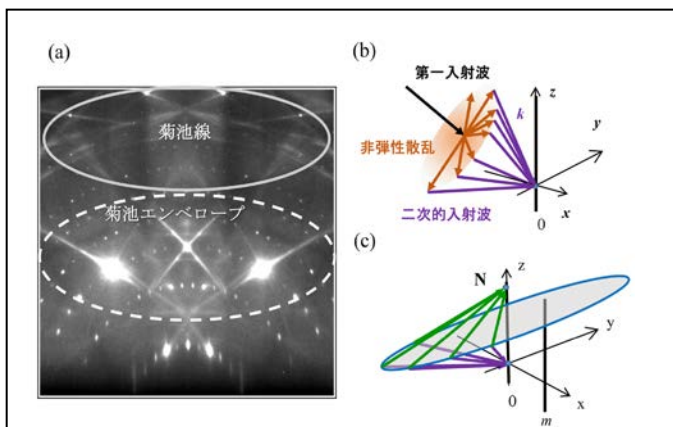


図 1 (a)RHEED 像、(b)非弾性散乱過程と(c)菊池線 (エネルギー: $E_0 = 15\text{keV}$, $[11\bar{2}]$ 方位, 視射角: 5.5°)

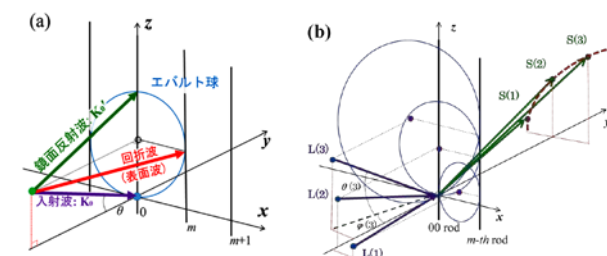


図2 (a)表面波共鳴条件および(b)菊池エンベロープの形成を表すエバルド作図

に向かう回折波を励起する。これらの回折波はスクリーン上では、ほぼ直線として観察され菊池線と呼ばれている。また、菊池エンベロープ[7]の形成は、図 2(a)に示すように、まず、二次的入射波のエバルト球が表面の二次元格子による逆格子ロッドに接する時に、表面に平行な回折波 (表面波) が励起される。この表面波は、結晶外へ出られないため、その一部が鏡面反射波に乗り移り、鏡面反射波の強度が著しく増大する (表面波共鳴 (SWR) 現象)。m 次の逆格子ロッドに対して、SWR 条件を満たす二次的入射波は、図 2(b)に示すように L(1)、L(2)、L(3) の方向から入射した波であり、それぞれの鏡面反射波の強度が増大する。その結果、軌跡はスクリーン上で、S(1)、S(2)、S(3) に沿った放物線状の輝線として観測される。これが菊池エンベロープであり、その強度分布は表面二次元格子の逆格子ロッドに対する情報を含んでいるので、表面の構造解析をする場合により詳細な表面領域の情報を与えてくれることが期待された。

このように、菊池パターンは1つの格子面に種々の方向から入射した二次的入射波の内、回折条件を満たした波により形成されるため、直線状または曲線状に像を形成する。図3に示すように、動理学的回折理論に基づく00スポットのRHEED

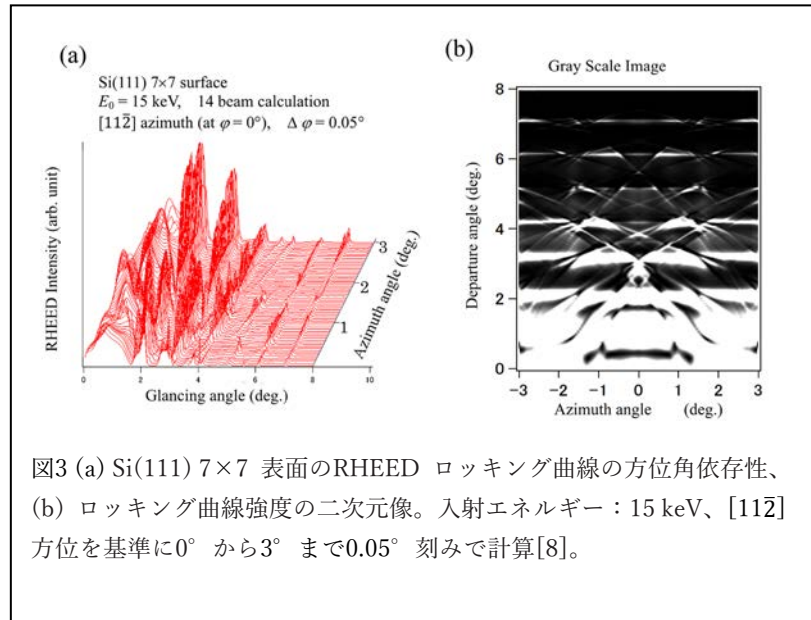


図3 (a) Si(111) 7×7 表面のRHEED ロッキング曲線の方位角依存性、(b) ロッキング曲線強度の二次元像。入射エネルギー：15 keV、 $[11\bar{2}]$ 方位を基準に 0° から 3° まで 0.05° 刻みで計算[8]。

00スポットのRHEED ロッキング曲線をすべての方位角について計算した結果、その二次元像が菊池線や菊池エンベロープの現れる位置を再現することが分かった[8]。したがって、その二次元像に非弾性散乱の散乱断面積を畳み込み積分することで、菊池パターンをシミュレーションすることが可能であると考えた。この解析過程で表面プラズモン(SP)や固体プラズモン(BP)といった素励起の散乱断面積の違いなども明らかにでき、新たな知見を得ることも期待された。

2. 研究の目的

前述の様に菊池パターンの強度分布は、多くの入射条件における回折波の情報を含んでおり、実験的に入射条件を変化させて測定して得られた結果と同等の情報が1枚の回折像の中に含まれている。そこで、実験的に非弾性散乱確率を求めることで、非弾性確率を組み込んだ菊池パターンのシミュレーションができ、1枚の回折パターンから詳細な表面構造解析が可能となる。ただし、菊池パターンは、種々の素励起の非弾性散乱電子により形成されるので、各素励起に対する散乱断面積を知る必要がある。そのために本研究では、既存のRHEED装置[9]のスクリーン手前に、堀尾らの研究[10]で実績のある阻止電位型のエネルギーフィルターをフランジマウント型で作製・装着し、阻止電位を変化させたパターンから、各種素励起による非弾性散乱の強度分布を測定する。その結果と動理学的回折理論に基づくRHEED強度の二次元像[8]を比較することで素励起による非弾性散乱の散乱断面積を実験的に測定することが、第一の目的である。

第二に、動理学的回折理論に基づく00スポットのRHEED ロッキング曲線をすべての方位角について計算した結果に、非弾性散乱断面積を畳み込み積分することで、菊池パターンを再現することが可能か判断することである。この過程でSPやBPといった素励起の散乱断面積の違いなども明らかになり、新たな知見を得ることも期待される。

3. 研究の方法

(1) 菊池パターンのエネルギー分光

各種素励起による非弾性散乱の強度分布を測定するために、平面の3枚グリッドによるエネルギー阻止型のエネルギーフィルターを試料とスクリーンの間に設置し、菊池パターンのエネルギー分光をおこなった。阻止電位は、本研究費で購入した高精度高圧電源(負極性出力、HERR-20N1.5-LG)を用い3枚グリッドの中間の第2グリッドに阻止電位を印加し、ハイパスフィルターとして機能させた。この高精度高圧電源の性能は、 -15000V の高電圧出力時に、リップル： $0.15\text{V}(10\text{ppm})$ 、安定度： $0.75\text{V}(50\text{ppm})$ と非常に安定であり、電圧制御に関しても 20kV まで 1V

単位でデジタル制御できることが特徴である。これにより、-15000V 前後の阻止電圧を 1 V 単位で制御でき、Si 表面の非弾性散乱 (SP : $\hbar\omega_{SP}=11\text{eV}$ および BP : $\hbar\omega_{BP}=17\text{eV}$) によるエネルギー損失ピークの識別が可能となる。

(2) 動学的回折理論による菊池パターンの強度解析

菊池線や菊池エンベロープと言った菊池パターンを計算するために、動学的な回折効果を考慮した多波 (~250 波) の電子線回折強度の計算を行った。この鏡面反射強度の視射角依存性 (ロッキングカーブ) の方位角を少しずつ変えて計算すると、視射角と方位角の二次元の強度依存性が得られる。この二次元パターンの示す輝線の位置は菊池線や菊池エンベロープの現れる位置と一致することが分かっている[8]。この像は非弾性散乱による二次の入射波の強度がすべて 1 として菊池パターンを描いたものに相当するので、非弾性散乱確率を仮定して強度分布に畳み込み積分し二次元の強度分布を得る。次に二次電子放出によるバックグラウンドの視射角および方位角の依存性を実験結果から求め、その依存性を二次元の強度分布に反映させた二次元像を得る。この結果を実験で得られた菊池パターンと比較することで計算により菊池パターンが再現できるか判定する。

4. 研究成果

(1) 菊池パターンのエネルギー分光

図 4 は、入射電子の加速電圧を 12kV とし、 $[11\bar{2}]$ 方位、視射角 3.05° で入射したときの回折パターン強度をエネルギーフィルターを用いて分光し、微分処理したエネルギー損失スペクトルを示す。この入射条件では、菊池エンベロープの交差する点と鏡面反射点が重なり、表面波が強く励起される条件となっている。スペクトルは主に強い SP ($\hbar\omega_{SP} = 11\text{eV}$) の複数回励起に BP ($\hbar\omega_{BP}=17\text{eV}$) の成分が加わっていることが分かる。

同様な入射条件で、エネルギー分光はできていないが、菊池エンベロープに沿った非弾性散乱強度分布を解析した結果、図 5a) と b) に示すように鏡面反射点の上側と下側では散乱断面積 σ に違いがあり、それぞれの成分をガウス分布として分離してみると図 6 (a) 鏡面反射点の上側、および b) 鏡面反射点の下側) に示すように、下側では散乱ベクトルが $0.2\sim 0.3\text{\AA}^{-1}$ 付近にピークを持つ断面積が存在することが分かった。これは、SP の分散関係から予想される断面積の変化と対応することから、SP の励起確率が増大したものと判断した[11]。こ

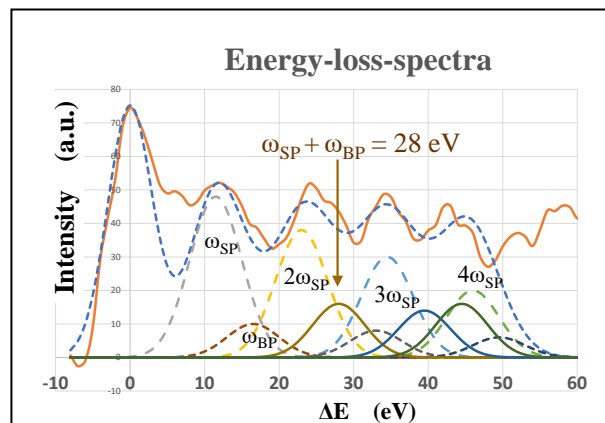


図 4 Si(111)表面のエネルギー損失スペクトル (入射エネルギー:12 keV)。

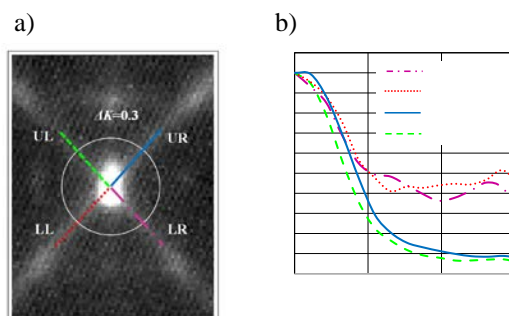


図 5 a) 鏡面反射点付近の菊池エンベロープ、
b) エンベロープに沿った散乱断面積[11]。

の様に、表面波を同時に励起する入射条件の菊池エンベロープに沿った反射位置では、SPの複数回励起が起こるため、非弾性散乱強度は著しく増大するものと考えられる。

(2) 強度計算による裏付け

このことを裏付ける計算結果として、図7に246波を考慮したRHEED強度計算から得られたロッキングカーブ強度の二次元分布に1種類の非弾性散乱断面積を畳み込み積分した二次元パターンを示す。下図の視射角が 1.62° の場合、強度分布(回折スポット強度および菊池パターン)は比較的良好に実験結果を説明できているが、表面波を同様に励起する視射角が 3.07° では鏡面反射点付近の著しい強度の増大が説明できない。この条件下では、表面プラズモンの励起確率が桁違いに高くなるためと考えられる。

したがって、表面波を励起する場合には表面プラズモンの効果を取り入れることで、菊池パターンの強度シミュレーションがより正確に行えると言える。

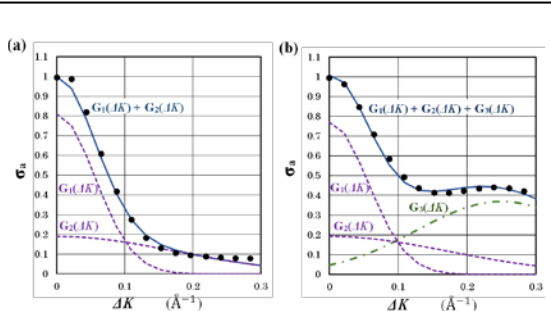


図6 a) 鏡面反射点上側の断面積の成分分離、
b) 下側の成分分離[11]。

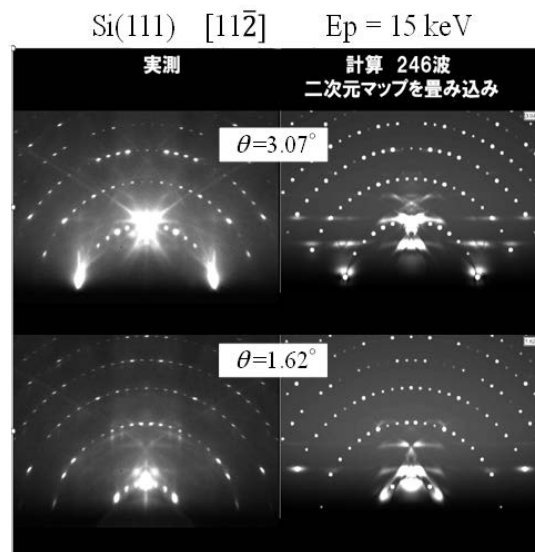


図7 実測の回折像(左)と素励起が1種類と仮定した菊池像(右)。Ep=15keV、246波の多波計算。

参考文献

- [1] T. Abukawa, et al., Phys. Rev. Lett. 97, 245502 (2006).
- [2] K. Kobayashi, et al., Extended Abstracts of the 19th Conference on Solid State Device Materials, Tokyo, Japan (1987), p. 323A
- [3] H. Brunner, G. Abstreiter, B. O. Kolbesen, and H. W. Meul, Appl. Surf. Sci. 39, 116 (1989).
- [4] K. Kimoto, K. Usami, H. Sakata, M. Tanaka, Jpn J. Appl. Phys. 32, L211 (1993).
- [5] J. Vanhellefont, et al., Appl. Surf. Sci. 63, 119 (1993).
- [6] A. Toda, N. Ikarashi, and H. Ono, J. Cryst. Growth 210, 341 (2000).
- [7] A. Ichimiya, K. Kambe, and G. Lehmpfuhl, J. Phys. Soc. Jpn. 49 (1980) 684.
- [8] Yuto Hagiwara and Yukichi Shigeta, J. Phys. Soc. Jpn. 86, 114606 (2017).
- [9] Y. Fukaya, Y. Shigeta, and K. Maki, Phys. Rev. B61, 13000-13004 (2000).
- [10] Y. Horio and T. Hara: Jpn. J. Appl. Phys. 41, L 736 (2002).
- [11] Y. Shigeta, M. Higuchi, Y. Hagiwara, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology 21, 211-217 (2023). <https://doi.org/10.1380/ejsnt.2023-014>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ishii Chiaki, Shigeta Yukichi	4. 巻 709
2. 論文標題 Structural changes due to reannealing of Ge thin films prepared by solid phase epitaxial growth on Si (111) surface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Thin Solid Films	6. 最初と最後の頁 138007_1~8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.tsf.2020.138007	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 重田 諭吉	4. 巻 68
2. 論文標題 半導体薄膜の固相エピタキシーにおける結晶化と再結晶化	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 横浜市立大学論叢	6. 最初と最後の頁 37-60
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shigeta Yukichi, Higuchi Morio, Hagiwara Yuto	4. 巻 21
2. 論文標題 Influence of Surface Plasmon on Kikuchi Pattern in RHEED	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 211-217
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1380/ejssnt.2023-014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Yukichi Shigeta, Morio Higuchi and Yuto Hagiwara
2. 発表標題 Influence of Inelastic Scattering Cross-Section on Kikuchi Pattern in RHEED
3. 学会等名 The 22nd International Vacuum Congress: IVC-22（国際学会）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------